THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR-INGÉNIEUR

PAR

Michel DEGRYSE

PREMIÈRE THÈSE

Contrôle Electronique
d'une Batterie d'Extraction de Plutonium

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 17 Mars 1967 devant la Commission d'Examen

MM. MAGAT	Président
TALBOT	Examinateurs
WEILL	Examinateurs
RIOLFO	Invité

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR-INGÉNIEUR

PAR

Michel DEGRYSE

UNIV. LEIDEN BIBL.

PREMIÈRE THÈSE

Contrôle Electronique
d'une Batterie d'Extraction de Plutonium

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 17 Mars 1967 devant la Commission d'Examen

MM. MAGAT	Président
TALBOT	Examinateurs
WEILL	Examinateurs
RIOLFO	Invité

FACULTE DES SCIENCES DE L'UNIVERSITE DE PARIS

PROFESSEURS

Le Doyen .... M. ZAMANSKY

	PRENANT	T Anatomie & histologie comparée
	GRASSE	T Evolution des êtres organisés
	PREVOST	T Chimie organique
	WYART	T Minéralogie & cristallographie
	TEISSIER	T Zoologie
	AUGER	T Physique quantique & relativité
	MONNIER	T Physiologie générale
	PIVETEAU	T Paléontologie
	ROCARD	T Physique E. N. S.
	CARTAN	T Mathématiques E. N. S.
	LAFFITTE	T Chimie générale
	N.....	T Géométrie supérieure
	COULOMB	T Physique du globe
Melle	COUSIN	T Biologie animale SPCN
	CHRETIEN	T Chimie minérale
	BOCQUET	T Zoologie
	KASTLER	T Physique E. N. S.
	EPHRUSSI	T Génétique
	GAUTHERET	T Biologie végétale CPEM
	LUCAS R.	Recherches physiques
	THOMAS A.	T Biologie cellulaire
	MORAND	T Physique enseignement
	SOLEILLET	T Physique CPEM
	FORTIER	T Mécanique expérimentale des fluides
	DRACH	T Zoologie
	QUENEY	T Météorologie & dynamique de l'atmosphère
	GALLIEN	T Embryologie
	EICHHORN	T Botanique
	DE CUGNAC	T Biologie végétale SPCN
Melle	CAUCHOIS	T Chimie physique
	THELLIER	T Physique du globe
	PONCIN	T Mécanique générale
	DUBREIL	T Arithmétique & théorie des nombres
	QUELET	T Chimie organique
	CAGNIARD	T Géophysique appliquée
	CHAMPETIER	T Chimie macromoléculaire
	CUVILLIER	T Micropaléontologie
	JUNG	T Géologie
	TRILLAT	T Microscopie & diffraction électronique
	WIEMANN	T Chimie organique & structurale
	VASSY	T Physique de l'atmosphère
	DESTOUCHES	T Théorie physique
	AMIEL	T Chimie générale
	HOCART	T Minérallogie & cristallographie
	J.P. MATHIEU	T Physique optique
	COUTEAUX	T Cytologie
	CHOQUET	T Théorie des fonctions & topologie
	FELDMANN	T Biologie végétale marine
	JOST	T Physiologie comparée
	FORTET	T Calcul des probabilités & physique mathématiques
	SCHWARTZ	T Calcul différentiel & intégral
	CHOUARD	T Physiologie végétale
	MALAVARD	T Aviation (technique aéronautique)
	BRELOT	T Analyse supérieure
	NORMANT	T Synthèse organique
	BENARD	T Chimie appliquée
	DUGUE	T Statistique mathématique
	SOULAIRAC	T Psychophysiologie
	ULRICH	T Physiologie végétale appliquée
	KIRRMANN	T Théories chimiques
	CHADEFAUD	T Botanique
Melle	LE BRETON	T Physiologie de la nutrition
	LELONG	T Application de l'analyse à la géométrie
	DEVILLERS	T Anatomie & histologie comparées
	EHRESMANN	T Topologie algébrique
	FRANÇON	T Physique SPCN
	GLANGEAUD	T Géographie physique, géologie dynamique
	DODEMENT	T Mathématiques MGP
	PISOT	T Technique mathématique de la physique
	ROCH	T Géologie
	SCHATZMANN	T Astrophysique
	TERMIER	T Géologie générale
	ZAMANSKY	T Mathématiques générales
	LENNUIER	T Physique M. G. P.
	ROUTHIER	T Géologie appliquée
Mme	TONNELAT	T Physique théorique
	DIXMIER	T Mathématiques M. P. C.
	SOUCHAY	T Chimie générale
	AIGRAIN	T Electrotechnique
	BRUSSET	T Chimie systématique

	LEVY	T Physique théorique des hautes énergies
Mme	CHAIX	T Chimie biologique
Mme	HUREL PY	T Biologie végétale CPEM
	PANNETIER	T Chimie générale I
	BRUN	T Mécanique des fluides I
Mme	DUBREIL	T Mathématiques (Agrégation)
Mme	LELONG	T Mathématiques II E. N. S.
	BELLAIR	T Géologie S. P. C. N.
	COTTE	T Physique électricité
	DUBOIS J. E	T Chimie organique physique
	LAMOTTE	T Zoologie E. N. S
	OLMER	T Energétique générale
	GAUTHIER	T Mécanique appliquée
	BARCHEWITZ	T Chimie physique
	BROSSEL	T Physique atomique
	BUSER	T Physiologie comparée
	CAMUS	T Physiologie végétale
	CURIEN	T Minéralogie & cristallographie
	POSSOMPES	T Zoologie
	PULLMANN	T Chimie quantique
	TEILLAC	T Physique nucléaire & radio-activité
	VILLE	T Econométrie
	WILLEMART	T Chimie CPEM
	FREYMANN	T Recherches physiques
	ROLLET	T Chimie minérale
Melle	JOSIEN	T Chimie SPCN
	CHEVALLEY	T Géométrie algébrique & théorie des groupes
	GERMAIN	T Mécanique théorique des fluides
	LUCAS G.	T Géologie
	ALLARD	T Chimie physique
	BERTHELOT	T Physique des particules fondamentales
	BRICARD	T Météorologie
Mme	ALBE-FESSARD	T Psycho - physiologie
	M. JULIA	T Etude des molécules naturelles complexes
	MAGAT	T Physico-chimie des rayonnements
Melle	QUINTIN	T Electrochimie
	MONOD	T Chimie du métabolisme
	DE POSSEL	T Analyse numérique
	CHARLOT	T Chimie analytique
	CHATELET	T Chimie CPEM
	MATTLER	T Physique SPCN
	BOUISSIERES	T Radiochimie
Mme	COUTURE	T Thermodynamique & mécanique physique
	FRANC	T Biologie animale CPEM
	SCHNELL	T Botanique tropicale
	STOLKOWSKI	T Physiologie générale
	ACHER	T Chimie biologique
	BAUDOIN	T Biologie animale CPEM
	BEAUMONT	Biologie animale SPCN
	BLAMONT	Géophysique ionosphère
	BOUREAU	T Botanique
	CURIE D.	Physique MGP
	DURAND DELGA	T Géologie
	HELLER	T Physiologie végétale
	TORTRAT	T Calcul des probabilités
	CAILLEUX	T Géologie SPCN
	MAGNAN	Physique électricité
	DAUDEL	T Mécanique ondulatoire
Melle	FOURCROY	Biologie végétale SPCN
Mme	CHOQUET BRUHAT	Mécanique analytique & mécanique céleste
Melle	VEIL	T Physiologie générale
	LWOFF	T Microbiologie
	SIESTRUNCK	T Mécanique physique & expérim.
	CABANNES	T Mécanique générale
	CAIRE	T Géographie physique & géologie dynamique
	COMOLET	Mécanique des fluides
	DELLOUE	T Physique de l'exosphère
	HOUILLON	Biologie animale CPEM
	OLIVIER	Anthropologie
	SAMUEL	T Mathématiques (ENS Jeunes Filles)
	THIRY	T Mécanique céleste
	ABELES	T Physique SPCN
	AMAT	T Thermodynamique
	AUBOIN	T Géologie
Mme	BENOIT-GUEUTAL	T Physique nucléaire & radio-activité
	BOUGIS	Biologie végétale marine Villefranche s/ Mer
	RIGAUDY	T Chimie SPCN
	COLLONGUES	Chimie CPEM

	DUBERT	Biochimie
	NOZIERES	Physique générale
	CADIOT	Chimie organique
	IVANOFF	Océanographie physique
	FRANÇOIS	Zoologie
	TALBOT	Génie chimique
Mme	NOUGAREDE	Botanique
	BRUHAT	T Mathématique MPC
	FOURNET	Electricité générale
	DEHEUVEIS;	T Mathématiques propédeutique
	FURON	T Géologie SPCN
Mme	GANS	T Génétique
	GENEVES	Biologie végétale CPEM
	HUPE	T Pétrographie
	HOLLANDE	T Biologie générale
	LIONS	T Analyse numérique
	MAITTE	T Chimie organique
	NICOLAS	Géologie appliquée
	PANIGEL	Biologie générale
	RAVIER	T Pétrographie
	MOREL F.	T Physiologie comparée
	ROSEAU	T Mécanique théorique des fluides
	ROUBINE	Electronique E. S. E.
	SILBER	T Chimie CPEM
	UEBERSFELD	T Electronique
	YVON	T Théories physiques
	HERVE	T Mathématiques
Mme	PECKER-WIMEL	T Astrophysique
	BALKANSKI	Physique M. P. C.
	LE CORRE	T Electricité
	NATAF	T Physique nucléaire & radio-activité
	ECHALIER	Biologie animale CPEM
	BARRAUD	T Physique CPEM
	DARS	Géologie structurale & appliquée
	CAMEFORT	T Botanique (agrégation)
	VICHNIEWSKY	T Mécanique industrielle
	SIGWALT	T Chimie SPCN
	BLAQUIERE	Electronique
	BARUCH	Physique propédeutique
	ARNOUS	T Physique théorique
	SLONIMSKI	Génétique
	MALLIAVIN	T Mathématiques propédeutique
	GAUDEMAR	Chimie propédeutique
	BROUSSE	T Mécanique théorique
	ROSCH	T Astronomie
	GUY	T Physique expérimentale
	LAZARD	Mathématiques MPC
	MOREL P.	Physique MPC
	ARSAC	Programmation
	LEFEBVRE	Chimie MPC
	BOK	Physique propédeutique
	CHAPEVILLE	Biochimie
	BENOIT	Physique CPEM
	RIO	Chimie CPEM
	JAUZEIN	Géologie ENS
	PREVOST G.	Biologie végétale CPEM
	FAVARD P.	Biologie animale CPEM
Mme	CHARNIAUX-COTTON	Evolution des êtres organisés
Melle	FICINI	Chimie CPEM
	LEQUEUX	Astronomie
	COHEN TANNOUDJI	Physique atomique
	TAVERNIER	Physique CPEM
	DURAND Michel	Biologie animale SPCN
	PASCAUD	Physiologie
Mme	PETIT	Biologie animale CPEM
	CAGNAC	Physique agrégation
	FALK-VAIRANT	Physique nucléaire
	KRASNER	T Mathématiques
	BENZECRI	T Statistiques
	VINH MAU	Physique M. G. P.
	DUQUESNES	Physique CPEM
	SCHUTZENBERGER	Programmation
	TREMILLON	Chimie MPC
	FAYARD	Chimie MPC
	BUVET	Chimie CPEM
	AUTHIER	Physique MPC
	PICINBONO	T Physique CPEM
	BONNEFILLE	Electrotechnique
Mme	PUISEUX DAO	Biologie végétale

Le Secrétaire Général R. POULLAIN

FACULTE DES SCIENCES D'ORSAY

PROFESSEURS

	TONNELAT	T Biologie physico-chimique
	BRUNN Jan	T Géologie historique
	JEAN M.	T Physique nucléaire
	BERGERARD J.	T Zoologie
	ROGER J.	T Paléontologie
	LEFORT M.	T Chimie nucléaire
	LAGARRIGUE A.	T Physique des hautes énergies
	JULLIEN J.	T Chimie structurale organique
	ARNULF A.	T Optique
	ROUAULT M.	T Diffraction électronique
	MARECHAL A.	T Optique théorique et appliquée
	MAZET R.	T Mécanique générale
	DAVID Serge	T Chimie agrégation
	GUERIN H.	T Chimie des gaz et des combustibles
	LESIEUR L.	T Mathématiques MPC et algèbre
	KOURGANOFF	T Astronomie
	ARNOULT P.	T Physique électronique
	KAHANE J. P.	T Mathématiques
	BROCHARD J.	T Physique propédeutique
Mme	ROIZEN	T Physique C. P. E. M.
	BERTEIN F.	T Electronique
	MALGRANGE B.	T Mathématiques
	CORABOEUF E.	T Physiologie animale
	FRIEDEL J.	T Physique des solides
	CHEVAUGEON J.	T Cryptogamie
	MEYER P.	T Physique théorique & atomique
	LEHMANN P.	T Accélérateur linéaire
	CHABBAL R.	T Physique propédeutique
	DELCROIX J. M.	T Physique des plasmas
	CERF J.	T Mathématiques

	D'ESPAGNAT B.	T Physique théorique
	SCHAEFFER P.	T Microbiologie
	DE GENNES P.	T Physique des solides
Mme	MARTY N.	Physique propédeutique
	GOURDIN M.	Physique théorique
	PEREZ-Y-JORBA	Physique propédeutique
	GORENFLOT E.	Biologie végétale SPCN
	RIOU M.	Physique nucléaire
	BROUSSE R.	Géologie S. P. C. N.
	LIORET C.	Physiologie végétale
	CLAUSER H.	Chimie biologique
	JANCOVICI B.	Physique atomique
	LURCAT J.	Physique propédeutique
	LE BERRE J.	Entomologie
	LAVOREL J.	Biophysique
	PERIO P.	Physique propédeutique
	FETIZON M.	Stéréochimie
	CHEMLA M.	Chimie des isotopes
	MAZIERES C.	Chimie SPCN
	VILKAS M.	Chimie C. P. E. M.
	BLANDIN A.	Physique des solides
	BRUN G.	Génétique
	MERCOUROFF	Physique agrégation
	ANDRE J.	Microscopie électronique
	CHEVALLIER F.	Physiologie animale
Melle	MARCOU	Biologie cellulaire C. P. E. M.
	BOURDU R.	Physiologie végétale
	BERKALOFF A.	Biologie animale CPEM
Melle	LEFORT M	Biologie cellulaire CPEM
Mme	LAMBERT	Physique C. P. E. M.
	BIZOT J. C.	Physique M. P. C.
	GUIRAUD J. P.	Mécanique

	LABOUESSE B.	Chimie S. P. C. N
	MANGENOT G.	T Biologie végétale
	JACQUINOT P.	T Optique
	GUINIER A.	T Electricité & physique des solides
	GRIVET P.	T Electronique
	BLANC-LAPIERRE A.	T Accélérateur linéaire
	L'HERITIER P.	T Génétique des virus
	LEMEE G.	T Ecologie végétale
	MOYSE A.	T Physiologie végétale
	DODE M.	T Chimie thermodynamique
	DENY J.	T Mathématiques
	RIVIERE A.	T Géologie générale & sédimentologie
	MICHEL A.	T Chimie minérale
	MAY R.	T Anatomie comparée
	DELANGE H.	T Mathématiques
	CHAPELLE J.	T Physique expérimentale
	LACOMBE P.	T Métallurgie
	BENOIT P.	T Physiologie générale
	GUINOCHET J.	T Biologie végétale SPCN
	NERON A.	T Mathématiques
	NOZERAN R.	T Botanique approfondie
	CASTAING R.	T Thermodynamique
	ELLENBERGER F.	T Géologie structurale
	LEDERER E.	T Chimie biologique
	RIZET J.	T Génétique
	LENDER T.	T Biologie animale SPCN
	POITOU G.	T Mathématiques
	FREON P.	T Chimie organique

TABLE DES MATIERES

Pages

REMERCIEMENTS 3

GENERALITES SUR LE PROCEDE DE L'USINE DE MARCOULE 5

INTRODUCTION 9

CHAPITRE I - Analyse des mesures neutroniques 13

Généralités 13

I. 1 - Etude des spectres d'énergie des neutrons issus des réactions (α , n) en milieux solvant et aqueux 14

I. 1. 1. - Spectre d'énergie élémentaire des neutrons primaires pour des particules α monoénergétiques ... 14

I. 1. 2. - Spectre d'énergie des neutrons primaires pour des sources de particules α monoénergétiques en milieux épais 16

I. 1. 3 - Applications numériques 19

I. 2 - Calcul des rendements de réaction (α , n) dans des milieux composés 23

I. 2. 1 - Détermination de la loi de composition 23

I. 2. 2 - Applications numériques 24

I. 3 - Calcul des activités et des spectres d'énergie des neutrons en phase aqueuse et solvant, suivant le pourcentage en ^{240}Pu 26

I. 4 - Détermination des rendements de détection 29

I. 5 - Corrélation expérimentale des taux de comptage et des masses de plutonium contenues dans la batterie 34

CHAPITRE II - Théorie élémentaire de la batterie d'extraction VI du cycle de purification du plutonium de l'usine de Marcoule 39

Généralités 39

II. 2 - Description des essais statiques et dynamiques de la batterie d'extraction VI 40

Pages

II. 2 - Définition de la saturation du solvant 46

II. 3 - Etude du fonctionnement sans fuite de plutonium dans le raffinat 48

II. 3. 1 - Loi d'équilibre de la rétention en plutonium 48

II. 3. 2 - Evolution de la rétention en plutonium pour des variations des conditions d'entrée 48

II. 4 - Etude du fonctionnement avec fuite de plutonium dans le raffinat 50

CHAPITRE III - Etude de la régulation de la batterie d'extraction VI 51

Généralités 51

III. 1 - Calcul du point d'équilibre 53

III. 2 - Evolution de la rétention en plutonium correspondant à une variation des concentrations d'entrée 54

III. 3 - Problème du démarrage 55

III. 4 - Description de l'équipement 57

CHAPITRE IV - Comparaison des résultats obtenus avant et après régulation ... 63

IV. 1 - Comparaison des valeurs d'équilibre observées aux valeurs calculées 63

IV. 2 - Comparaison des temps de réponse observés aux temps de réponse calculés 67

IV. 3 - Caractéristiques de l'extrait et du raffinat avant et après régulation 71

IV. 4 - Fiabilité 79

CONCLUSION GENERALE 81

ANNEXE I - Effet de la saturation en uranium du solvant sur le facteur de décontamination en produits de fission 83

ANNEXE II - Calcul du spectre d'énergie élémentaire des neutrons primaires pour des particules α monoénergétiques 85

ANNEXE III - Calcul du spectre d'énergie des neutrons primaires pour des sources de particules α monoénergétiques en milieu épais 91

ANNEXE IV - Calcul des rendements de réaction (α , n) dans des milieux composés 99

REFERENCE 103

PLAN

- Remerciements
- Généralités sur le procédé de l'usine de Marcoule
- Introduction

- CHAPITRE I - Analyse des mesures neutroniques
  - Généralités
  - I.1. Etude des spectres d'énergie des neutrons issus des réactions (α, n) en milieu solvant et aqueux
    - I.1.1. Spectre d'énergie élémentaire des neutrons primaires pour des particules α monoénergétiques
    - I.1.2. Spectre d'énergie des neutrons primaires pour des sources de particules α monoénergétiques en milieu épais
    - I.1.3. Applications numériques
  - I.2. Calcul des rendements de réaction (α, n) dans des milieux composés
    - I.2.1. Détermination de la loi de composition
    - I.2.2. Applications numériques
  - I.3. Calcul des activités et des spectres d'énergie des neutrons en phase aqueuse et phase solvant, suivant le pourcentage en ^{240}Pu
  - I.4. Détermination des rendements de détection
  - I.5. Corrélation expérimentale des taux de comptage et des masses de plutonium contenues dans la batterie.

- CHAPITRE II - Théorie élémentaire de la batterie d'extraction VI du cycle de purification du plutonium de l'usine de Marcoule
  - Généralités
  - II.1. Description des essais statiques et dynamiques de la batterie d'extraction VI
  - II.2. Définition de la saturation du solvant

II.3. Etude du fonctionnement sans fuite de plutonium dans le raffinat

II.3.1. Loi d'équilibre de la rétention en plutonium

II.3.2. Evolution de la rétention en plutonium pour des variations des conditions d'entrée

II.4. Etude du fonctionnement avec fuite de plutonium dans le raffinat

- CHAPITRE III - Etude de la régulation de la batterie d'extraction VI

Généralités

III.1. Calcul du point d'équilibre

III.2. Evolution de la rétention en plutonium correspondant à une variation des concentrations d'entrée

III.3. Problème du démarrage

III.4. Description de l'équipement

- CHAPITRE IV - Comparaison des résultats obtenus avant et après régulation

IV.1. Comparaison des valeurs d'équilibre observées aux valeurs calculées

IV.2. Comparaison des temps de réponse observés aux temps de réponse calculés

IV.3. Caractéristiques de l'extrait et du raffinat avant et après régulation

IV.4. Fiabilité

- CONCLUSION GENERALE

- Annexe I - Effet de la saturation en uranium du solvant sur le facteur de décontamination en produits de fission

- Annexe II - Calcul du spectre d'énergie élémentaire des neutrons primaires pour des particules α monoénergétiques

- Annexe III - Calcul du spectre d'énergie des neutrons primaires pour des sources de particules α monoénergétiques en milieu épais

- Annexe IV - Calcul des rendements de réaction (α , n) dans des milieux composés

REFERENCES.

REMERCIEMENTS

Au cours du colloque sur l'instrumentation dans les usines de traitement chimique des combustibles irradiés qui s'est tenu à Paris en 1963, les exploitants ont indiqué que leurs préoccupations actuelles sont, d'une part, la diminution du prix de revient du traitement, et, d'autre part, une meilleure sécurité d'exploitation [1].

L'étude de la fréquence et du prix de revient des contrôles analytiques nécessaires à l'exploitation dans le cas du procédé de Marcoule montre que ces objectifs peuvent être atteints par l'emploi de dispositifs d'analyse en continu pour le contrôle de fabrication, par l'amélioration du procédé chimique, et, dans certains cas, par l'utilisation d'appareils automatiques de réglage des paramètres de fonctionnement [2].

Ces dispositifs d'analyses et ces automatismes facilitent l'application d'un procédé continu, qui nécessite des investissements moindres que dans le cas d'un procédé discontinu ; ils éliminent des manutentions onéreuses de produits radioactifs, diminuent la main-d'oeuvre nécessaire, et améliorent l'efficacité et la sécurité du procédé.

Pour éviter un accroissement parallèle du coût de l'instrumentation, il est nécessaire d'utiliser des techniques permettant de réaliser les fonctions de contrôle pour le moindre prix : centralisation des informations, utilisation des techniques digitales ...

Ceci représente un programme très vaste et nous sommes encore loin de l'usine automatique. L'étude de la régulation d'une batterie d'extraction du plutonium que nous avons menée entre dans le cadre de ce programme.

Avant d'aborder le détail de l'étude je tiens tout d'abord à exprimer ma reconnaissance à Monsieur le Professeur MAGAT qui m'a fait l'honneur de patronner ce travail, ainsi qu'à Monsieur le Professeur TALBOT et à Monsieur WEILL, membres du jury, dont l'assistance m'a été utile.

Il me faut souligner, en général, le rôle promoteur du Commissariat à l'Energie Atomique qui a favorisé cette recherche, malgré les interférences avec les impératifs de production.

En particulier, je prie de croire en ma gratitude Monsieur DOIREAU et Monsieur SURDIN qui m'ont autorisé à effectuer ce travail au Département d'Eléctronique générale de Saclay.

Je remercie Monsieur COUTURE, Monsieur DESNEIGES et Monsieur JOUANNAUD, pour le bienveillant encouragement qu'ils m'ont donné.

Je tiens à exprimer ma vive reconnaissance à Monsieur RIOLFO qui a posé le problème traité, et qui m'a toujours prodigué ses conseils avisés.

Je suis heureux de remercier Messieurs BERGER, CHABERT, GUITTON, MARTINET, MIMAUD et UBERSCHLAG pour l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail.

Enfin, je tiens à remercier Monsieur BOURG pour sa coopération active lors de la réalisation de l'ensemble de régulation, ainsi que Monsieur BRAMI qui m'a aidé à résoudre certaines équations différentielles par le calcul analogique.

Je ne saurai oublier toutes les personnes responsables du contrôle et de l'exploitation de l'atelier de Purification du Plutonium de Marcoule qui m'ont apporté leurs concours très précieux durant les essais, et qui ont accepté un surcroit de travail non négligeable.

GENERALITES SUR LE PROCEDE DE L'USINE DE MARCOULE

L'Usine d'Extraction du Plutonium du Centre de Marcoule reçoit les barreaux de "combustible" des réacteurs G2 et G3 dont elle sépare les trois éléments ou groupes d'éléments [3]:

- l'uranium non consommé,
- les produits provenant de la fission de l'uranium 235
- le plutonium formé à partir de l'uranium 238.

Le procédé de séparation de l'uranium, du plutonium et des produits de fission est basé essentiellement sur les propriétés d'un solvant, le tributyl-phosphate (T.B.P.) qui extrait sélectivement d'une solution aqueuse l'uranium hexavalent et le plutonium tétravalent alors que le plutonium trivalent et les produits de fission y sont quasiment insolubles.

La première partie du procédé comporte un atelier de dissolution des barreaux de "combustible" préalablement débarassés de leurs gaines de magnésium, suivi d'un cycle d'extractions, dont le but est de "décontaminer" l'uranium et le plutonium.

Le raffinat de l'extraction I, solution aqueuse chargée de la presque totalité des produits de fissions, est concentré, puis stocké. L'extrait, phase solvant chargée d'uranium et de plutonium, alimente l'extraction II qui assure la partition de l'uranium et du plutonium. L'extraction III sert à la réextraction de l'uranium par l'eau.

Les solutions aqueuses d'uranium et de plutonium issues du premier cycle d'extractions comportent encore des faibles quantités de produits de fission, et chacune d'elles doit subir une nouvelle opération de "décontamination".

La seconde décontamination de l'uranium s'effectue, après concentration de la solution, lors d'un second cycle d'extraction (extractions IV et V), puis il est stocké sous forme de nitrate d'uranyle hexahydraté, ou bien envoyé à l'usine de Malvesi pour être transformé en oxyde ou en métal.

La seconde décontamination du plutonium s'effectue à l'atelier de Purification, après concentration par précipitation d'hydroxyde et redissolution nitrique, à l'aide de l'uranium comme entraîneur, pour éviter les pertes en plutonium dans les eaux mères de décantation.

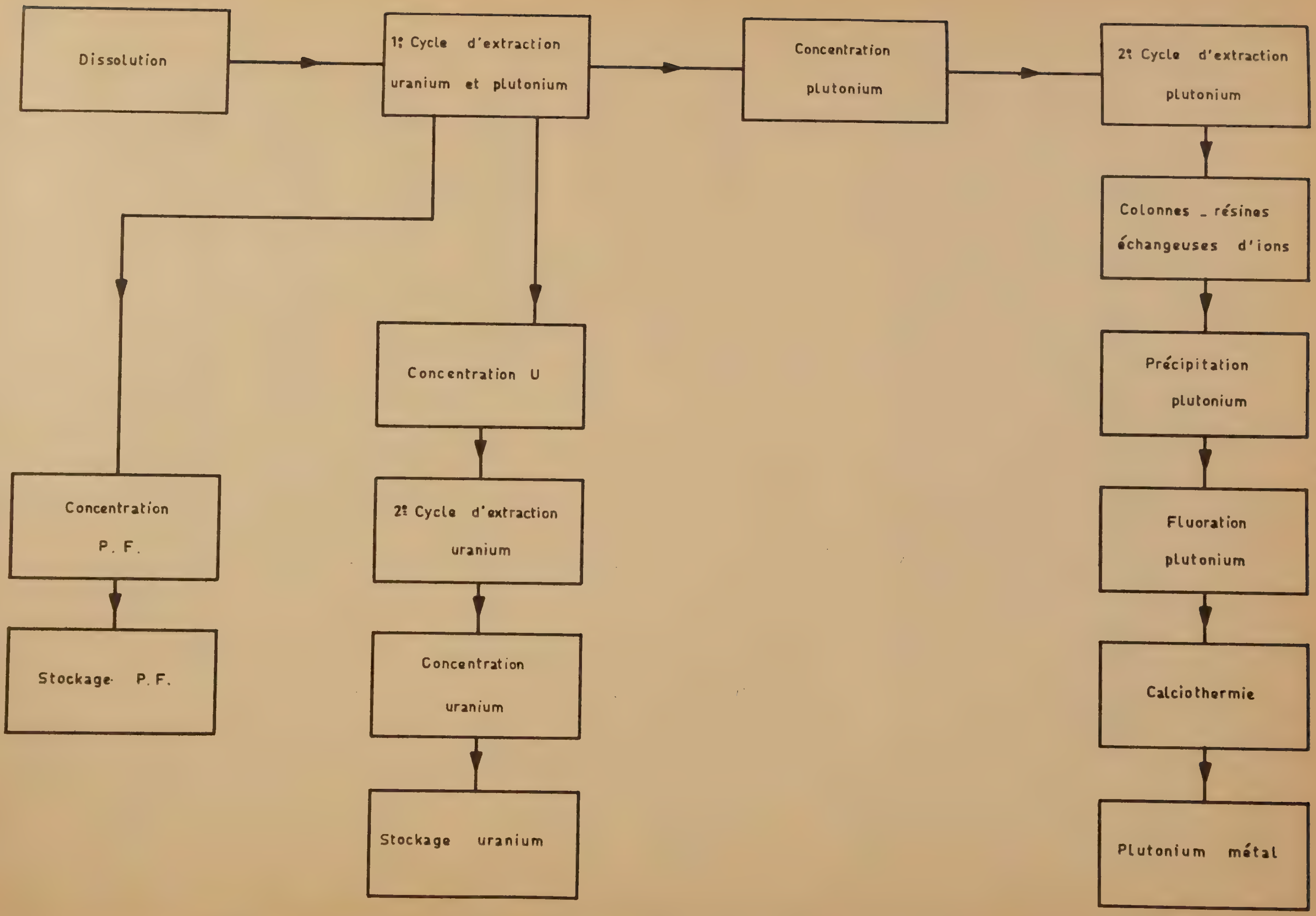


Schéma synoptique simplifié du procédé de l'usine de MARCOULE

Cet atelier comporte un cycle d'extraction, de schéma semblable à celui du premier cycle (extractions VI - VII et VIII).

Les raffinats des extractions VI et VIII sont recyclés vers le premier cycle pour éviter toute perte en plutonium.

L'extrait est purifié sur résines anioniques, puis le plutonium est précipité par l'acide oxalique. L'oxalate est séché, puis transformé en fluorure par l'acide fluorhydrique anhydre à 550°.

Ce fluorure est mélangé avec du calcium métallique, et par réaction calciothermique on obtient un lingot de métal pur.

Les précautions prises, compte tenu de la valeur de la matière, conduisent, malgré le grand nombre d'opérations chimiques, à un rendement global de tout le traitement de 99 pour cent.

Pour les produits de fission, les facteurs de séparation sont très élevés : par exemple, le plutonium contient moins d'un millionième des produits de fission qui l'accompagnaient dans le combustible irradié.

Pour l'uranium appauvri ce rapport est de l'ordre de 1/100 000.

INTRODUCTION

Dans le procédé, le second et dernier cycle de purification du plutonium a une grande importance puisque l'activité gamma résiduelle du plutonium est directement liée à l'efficacité de ce cycle.

D'autre part, si le volume des solutions traitées est moindre qu'en début du procédé, les concentrations en plutonium sont beaucoup plus élevées, et il est nécessaire d'effectuer un contrôle très strict des pertes.

Antérieurement à cette étude, l'extraction VI, partie essentielle du cycle, répondait en moyenne aux conditions requises.

Cependant, les dispersions des activités gamma résiduelles et des pertes en plutonium étaient très importantes, pour des raisons que nous analyserons ultérieurement et le cycle n'était pas adapté à une précipitation en continu du plutonium envisagée à l'époque.

Il a donc été décidé de réaliser un ensemble de contrôle automatique de la batterie d'extraction VI afin d'optimaliser ses caractéristiques.

Cette batterie se compose de 14 étages de mélangeurs décanteurs dans lesquels la phase aqueuse chargée en uranium et plutonium, provenant de l'atelier de concentration du plutonium, et une phase solvant, circulent à contre courant.

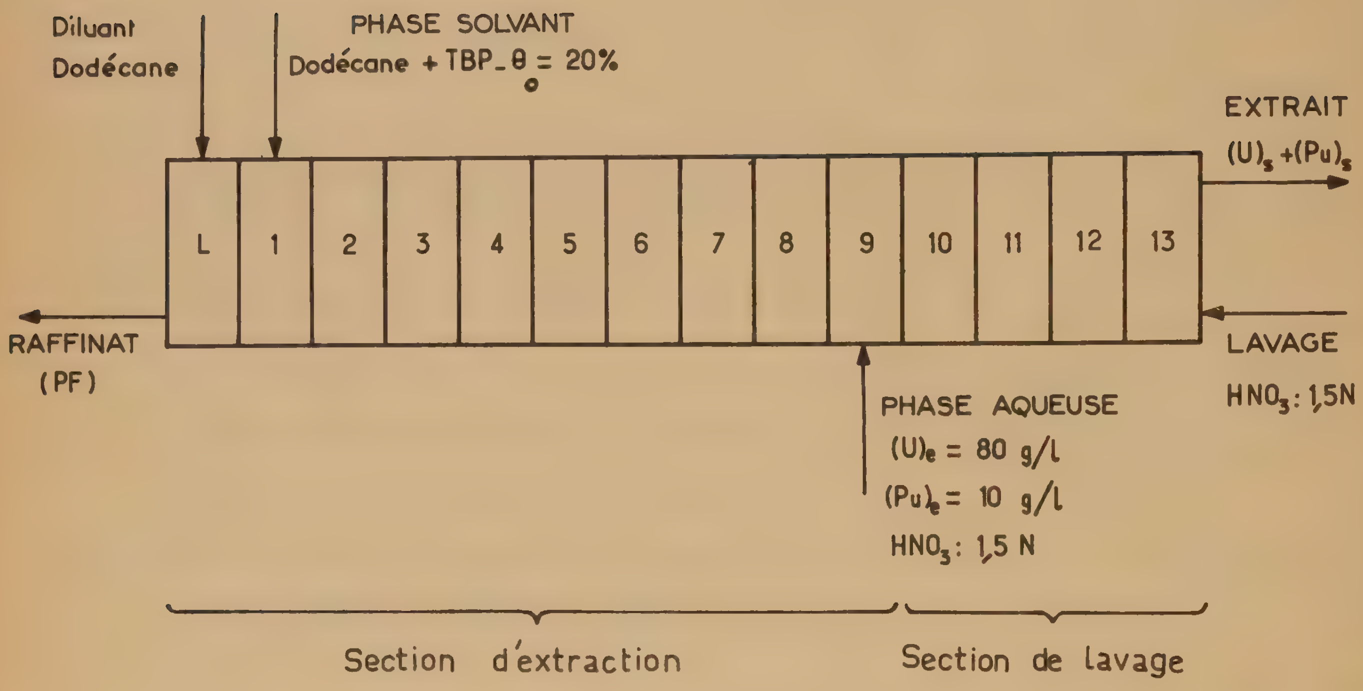
Le schéma de fonctionnement de cette batterie, ainsi que les conditions moyennes de concentration et d'acidité sont donnés sur la figure jointe.

La phase aqueuse chargée d'uranium, de plutonium, et de produits de fission, essentiellement ^{95}Zr et ^{95}Nb, sous forme de nitrates, est introduite à l'étage 9 et s'épuise en uranium et plutonium dans la section d'extraction.

Un ajustage de la solution d'alimentation a lieu avant introduction, de telle sorte que $[U] + [Pu] \simeq 90$ g/l, et que l'acidité libre soit voisine de 1,5 N HNO_3. Cette opération est discontinue.

Le solvant vierge est introduit à l'étage 1 ; il est constitué de dodécane et de tributyl-phosphate, au titre de 20 pour cent. Le tributyl-phosphate forme des molécules complexes avec les nitrates d'uranyle et de plutonium, ce qui permet d'extraire des éléments de la phase aqueuse par mélanges et décantations successifs.

Schéma de la batterie d'extraction VI



Une solution aqueuse de lavage, d'acidité 1,5 N, est introduite à l'étage 13 et réextrait une partie des éléments contenus dans le solvant, dans la section de lavage, afin d'améliorer le facteur de décontamination en produits de fission, c'est-à-dire le rapport des quantités de produits de fission par gramme de plutonium dans le raffinat et l'extrait.

Les résultats d'exploitation de l'extraction VI indiquent que le facteur de décontamination est lié au degré de saturation du solvant. En effet, le solvant extrait par ordre de préférence l'uranium, le plutonium et les produits de fission, et, nous pouvons considérer en première approximation que lorsqu'il est très chargé en uranium et plutonium, les produits de fission sont laissés dans le raffinat (annexe I - [4]).

La saturation du solvant se traduit par une importante rétention en plutonium dans les étages situés en amont de l'étage d'introduction de la phase aqueuse d'alimentation, et, la correspondance étant biunivoque, le degré de saturation est défini par la mesure de cette rétention par comptage neutron.

Cependant, en marche manuelle, les phénomènes dus à l'interaction de l'uranium et du plutonium, les retards divers, et les difficultés de réglages, rendaient quasiment impossible tout contrôle efficace de la saturation.

Cette instabilité se traduisait, soit par un bon facteur de décontamination, accompagné de pertes excessives de plutonium dans le raffinat, soit par un mauvais facteur de décontamination.

Dès lors, quoique le système était régi par de grandes constantes de temps, la recherche d'une correction automatique des conditions opératoires s'imposait.

L'étude de ce système comporte quatre chapitres. Dans le chapitre I, nous analysons les mesures neutroniques. Dans le chapitre II, nous relatons les résultats d'essais statiques et dynamiques de la batterie et nous élaborons une théorie élémentaire. Dans le chapitre III, nous définissons la chaîne de régulation et nous calculons les évolutions de la batterie régulée pour des perturbations diverses des paramètres d'entrée. Dans le chapitre IV nous relatons les résultats obtenus et nous les comparons aux performances antérieures et aux résultats prévus.

CHAPITRE I
ANALYSE DES MESURES NEUTRONIQUES.

GENERALITES.

Nous avons vu que le degré de saturation du solvant pouvait être déterminé par la mesure de la rétention en plutonium dans la batterie.

Comme les concentrations en plutonium des solutions dans les étages chargés sont de plusieurs dizaines de grammes/litre, de nombreux neutrons, issus de réactions (α , n) et de fissions spontanées du plutonium, sont émis.

Des détecteurs de neutrons thermiques placés dans des doigts de gant adjacents à chaque mélangeur - décanteur permettent d'établir une image du profil des concentrations en plutonium dans chaque étage, et, du même coup, de la rétention totale.

Les sources de neutrons sont fonction de la nature du milieu et des pourcentages des isotopes du plutonium.

Les taux de comptage sont fonction de la densité et de la géométrie des sources, du spectre d'énergie des neutrons émis, du ralentisseur, et du type de détecteur.

La corrélation précise des taux de comptage et de la rétention en plutonium nécessite l'analyse de ces divers aspects.

Dans ce chapitre nous étudions successivement les spectres d'énergie et les rendements de la réactions (α , n) en milieu composé, nous effectuons les calculs d'activité et de spectre d'énergie des sources en fonction du pourcentage des isotopes du plutonium et des milieux aqueux ou solvant, nous déterminons les rendements de détection en fonction de la géométrie, puis nous comparons les résultats aux valeurs obtenues en usine.

I.1. Etude des spectres d'énergie des neutrons issus des réactions (α , n) en milieux solvant et aqueux.

Les particules α sont produites suivant les schémas de désintégration suivants :

$$^{239}_{94}Pu \longrightarrow {}^{4}_{2}\alpha + {}^{235}_{92}U + 5,14 \text{ MeV}$$

$$^{240}_{94}Pu \longrightarrow {}^{4}_{2}\alpha + {}^{236}_{92}U + 5,16 \text{ MeV}$$

Les noyaux légers susceptibles de réagir sont ceux du carbone, de l'azote et de l'oxygène.

Les travaux de BONNER [5] et ROBERTS [6] ont montré que seules les réactions sur les isotopes ^{13}C, ^{17}O et ^{18}O sont possibles avec les α de 5,14 MeV du ^{239}Pu. Les abondances isotopiques naturelles des corps cités sont respectivement 1,1 pour cent, 0,04 pour cent et 0,2 pour cent.

I.1.1. Spectre d'énergie élémentaire des neutrons primaires pour des particules α monoénergétiques.

En écrivant les lois de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement de la mécanique non relativiste, et en utilisant les résultats expérimentaux qui décrivent les lois d'émission angulaires des neutrons dans le système du centre de masse, nous pouvons calculer le spectre d'énergie des neutrons issus de la réaction (α , n).

Les lois de la mécanique donnent :

$$E_n = E'_n + \frac{M_n M_\alpha}{(M_c + M_\alpha)^2} \cdot E_\alpha + \frac{2\sqrt{M_n \cdot M_\alpha}}{M_c + M_\alpha} \cdot \sqrt{E_\alpha \cdot E'_n} \cdot \cos\varphi'$$

La démonstration de cette relation, quoique classique, est donnée dans l'annexe II.

E_n : énergie du neutron dans le système du laboratoire

E_α : énergie de la particule α dans le système du laboratoire

Q : variation de la masse totale avant et après réaction, exprimée en MeV

M_n : masse du neutron

M_α : masse de la particule α

M_c : masse du noyau cible

M_F : masse du noyau final

φ : angle d'émission du neutron dans le système du laboratoire

φ' : angle d'émission du neutron dans le système du centre de masse

E'_n : énergie du neutron dans le système du centre de masse

$$E'_n = \frac{M_F}{M_F + M_n} \left[\left(\frac{M_c + M_\alpha}{M_c} \right) E'_\alpha + Q \right]$$

E'_α : énergie de la particule α dans le système du centre de masse

$$E'_\alpha = E_\alpha \left(\frac{M_c}{M_c + M_\alpha} \right)^2$$

La relation précédente peut s'écrire, pour une énergie E_α déterminée :

$$E_n = b + a \cos \varphi'$$

avec :

$$a = \frac{2\sqrt{M_n \; M_\alpha}}{M_c + M_\alpha} \sqrt{E_\alpha \cdot E'_n}$$

$$b = E'_n + \frac{M_n \; M_\alpha}{(M_c + M_\alpha)^2} \cdot E_\alpha$$

d'où :

$$E_{n\,max} = b + a$$

$$E_{n\,min} = b - a$$

Dans cette bande d'énergie, le spectre d'énergie élémentaire des neutrons est conditionné par la probabilité d'émission angulaire $\frac{dp}{d\varphi'}$ dans le système du centre de masse.

Quelques résultats, obtenus par SCHIFFER [7], qui a étudié ces lois expérimentalement, sont consignés dans l'annexe II. Nous observons qu'elles varient avec l'énergie de la particule α et que leurs formes ne peuvent être explicitées par des fonctions analytiques simples.

Le calcul rigoureux de ces spectres élémentaires nécessiterait l'utilisation des techniques du calcul numérique, mais notre propos étant plus limité nous utilisons des fonctions approchées.

Nous indiquons dans l'annexe II les calculs correspondants à deux approximations de qualité croissante, et sur la figure I.1. les résultats obtenus dans le cas de la réaction $^{13}C\ (\alpha\ ,\ n)^{16}O$, pour une particule α d'énergie 3 MeV.

Nous utilisons ultérieurement les spectres élémentaires pour déterminer le profil moyen du spectre de neutrons dans le cas de sources de particules α monoénergétiques en milieu épais.

Ce calcul donne des résultats voisins pour les deux approximations précédentes, et il nous semble justifié de prendre la plus simple, soit $\frac{dp}{d\varphi'} = \frac{1}{\pi}$.

D'où :

$$P_{E_n}^{E_\alpha} = \frac{1}{\pi \sqrt{a^2 - (E_n - b)^2}} \quad \text{pour } b - a \leqslant E_n \leqslant b + a$$

$$= 0 \quad \text{pour } E_n < b - a \text{ et } E_n > b + a$$

$P_{E_n}^{E_\alpha}$ est la densité de probabilité conditionnelle pour qu'un neutron ait une énergie comprise entre E_n et $E_n + d\,E_n$, lorsque la réaction a lieu avec une particule α d'énergie E_α .

I.1.2. Spectre d'énergie des neutrons primaires pour des sources de particules α monoénergétiques en milieu épais.

Les particules α issues de la désintégration des noyaux de plutonium sont monoénergétiques, mais elles perdent leur énergie d'une manière quasiment continue par ionisation dans le milieu.

Quoique SPENCER et FANO [8] tiennent ce résultat pour acquis, nous montrons dans l'annexe III que le spectre d'énergie des particules α est proportionnel à l'inverse du pouvoir d'arrêt du milieu.

Le spectre d'énergie des neutrons est obtenu en intégrant la loi de densité de probabilité à plusieurs variables $P\ (E_n\ ,\ E_\alpha\ )$:

$$P_{E_n} = \int_{E_\alpha} P_{(E_n\ ,\ E_\alpha\ )}\ d\,E_\alpha$$

$$= \int_{E_\alpha} .\ P_{E_\alpha}\quad \sigma_{E_\alpha}\ .\ P_{E_n}^{E_\alpha}\ d\,E_\alpha$$

- $P_{E_n}^{E_\alpha}$ est la probabilité calculée précédemment

Loi de densité de probabilité $P_{E_n}^{E_\alpha}$ dans le cas de la réaction $^{13}C(\alpha,n)^{16}O$ $E_\alpha = 3$ MeV

1 – Spectre calculé pour $\frac{dp}{d\varphi'} = \frac{1}{\pi}$

2 – Spectre calculé pour $\frac{dp}{d\varphi''} = \frac{1}{\pi} + \frac{\cos 2\varphi'}{1{,}565\,\pi}$

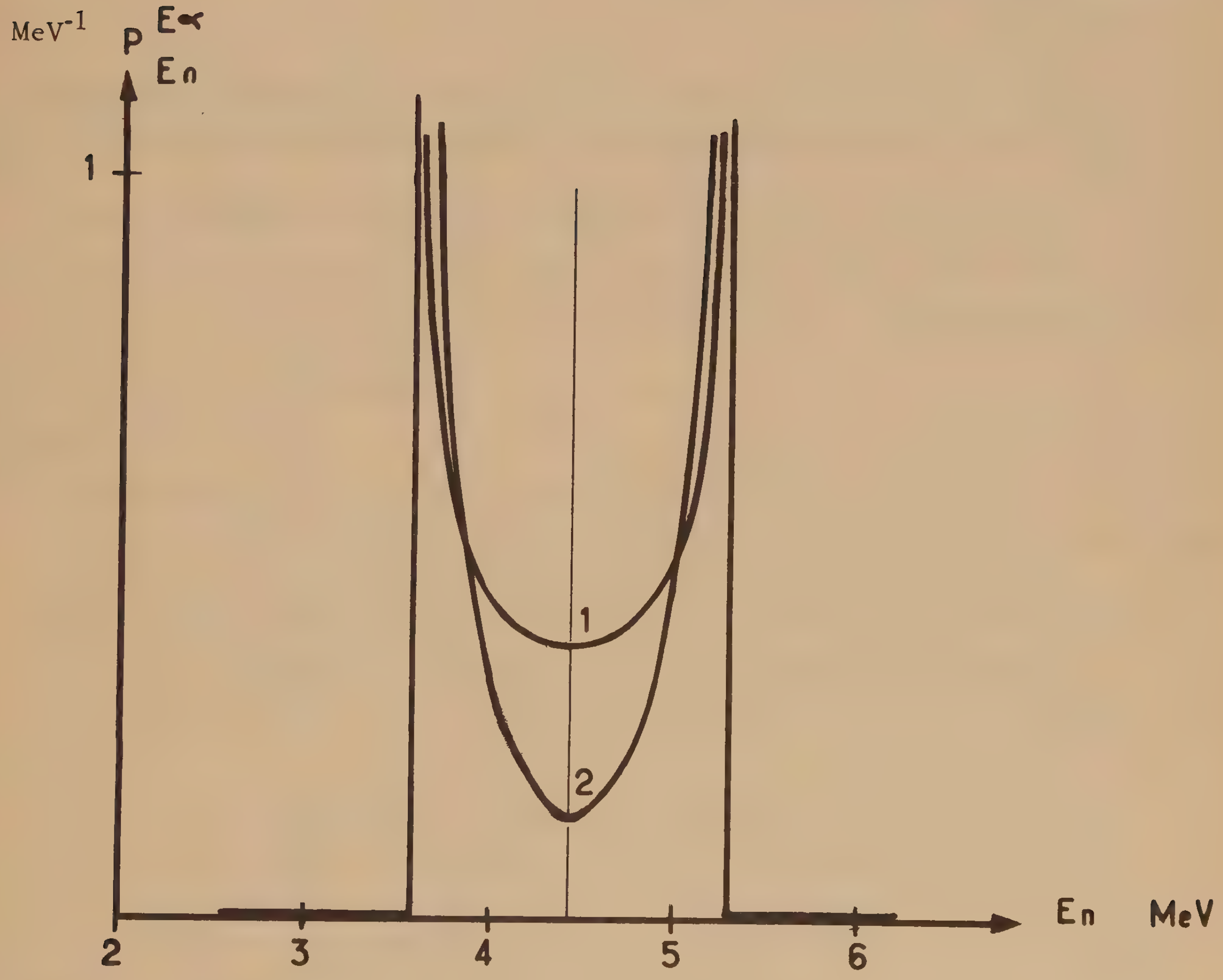


Fig: I - 1

- σ_{E_α} est la section efficace de réaction (α , n) suivant l'énergie E_α , ou fonction d'excitation
- P_{e_α} est le spectre d'énergie des particules α .

Pour ce type de réaction la section efficace est sensiblement nulle pour les énergies inférieures à la moitié de la barrière coulombienne.

EVANS [9] donne comme valeur approchée de cette barrière :

$$B = 0,76\ z\ .\ Z^{2/3}\ \text{MeV}$$

z = charge de la particule incidente

Z = charge du noyau cible.

Les travaux de BONNER pour les isotopes considérés ont montré que les lois σ_{E_α} présentent de nombreuses résonances pour une bande d'énergie comprise entre $\frac{B}{2}$ et E_α maximum.

Par contre, la formule de BETHE [10] indique que le pouvoir d'arrêt est sensiblement constant dans cet intervalle d'énergie, et la probabilité de réaction (α , n) dans le milieu est égale à σ_{E_α} .

L'intégrale de $P_{E_n}^{E_\alpha}\ .\ \sigma_{E_\alpha}$ dans l'intervalle d'énergie $(\frac{B}{2}, E_{\alpha\ max})$ donne la structure fine du spectre d'énergie des neutrons.

Cette structure est composée d'un nombre de pics double au nombre de résonances de la loi de section efficace, superposés à un profil moyen.

La détermination de la structure fine nécessite l'emploi du calcul numérique, et, comme elle n'a pas d'intérêt pour nous, nous nous bornons à rechercher le profil moyen.

Dès lors nous pouvons remplacer la loi de section efficace par sa valeur moyenne.

Soit :

$$P_{E_n} \simeq \overline{\sigma_{E_\alpha}} \int_{\frac{B}{2}}^{E_{\alpha\ max}} P_{E_n}^{E_\alpha}\ .\ dE_\alpha$$

$$= \frac{1}{E_{\alpha\ max} - \frac{B}{2}} \int_{\frac{B}{2}}^{E_{\alpha\ max}} P_{E_n}^{E_\alpha}\ dE_\alpha$$

Le calcul des spectres élémentaires a montré qu'une particule d'énergie E_α donne naissance à des neutrons situés dans une bande d'énergie bien déterminée. Inversement, seules des particules α d'énergies situées dans une bande définie dans l'annexe III,

peuvent donner naissance à des neutrons d'énergie E_n.

Il s'ensuit que le calcul de l'intégrale donnant P_{E_n} doit se faire sur l'intervalle d'énergie commun à la bande précédente et à l'intervale $(\frac{B}{2}, E_{\alpha\ max})$.

I.1.3. Applications numériques.

Réaction $^{13}C\ (\alpha\ ,\ n)\ ^{16}O$.

La réaction s'écrit :

$$^{13}_{6}C + {}^{4}_{2}\alpha \longrightarrow {}^{17}_{8}O^{*} \longrightarrow {}^{16}_{8}O + {}^{1}_{0}n + 2,37\ MeV$$

BONNER a vérifié que le noyau excité $^{17}O^{*}$ n'émet pas de gamma lors de sa dissociation. De même le noyau ^{16}O est à l'état fondamental. Toute l'énergie mise en jeu dans la réaction est donc emportée sous forme d'énergie cinétique par le neutron et le noyau final.

Les calculs sont développés dans l'annexe III, et nous donnons sur la figure I.2. les résultats obtenus.

La recherche de la structure fine du spectre d'énergie aurait conduit à superposer 36 pics au profil moyen calculé.

Réaction $^{18}O\ (\alpha\ ,\ n)\ ^{21}Ne$.

La réaction s'écrit :

$$^{18}_{8}O + {}^{4}_{2}\alpha \longrightarrow {}^{22}_{10}Ne^{*} \longrightarrow {}^{21}_{10}Ne + {}^{1}_{0}n + 0,22\ MeV$$

D'après BONNER, de même que pour la réaction précédente, toute l'énergie mise en jeu dans la réaction est emportée sous forme d'énergie cinétique par le neutron et le noyau final.

La loi de section efficace comporte de nombreuses résonances pour des énergies de particules α élevées, et l'approximation sur la moyenne de σ_{E_α} défavorise les hautes énergies par rapport à la loi réelle.

Les limites du spectre ne sont pas influencées par cette approximation ; seul le pic calculé est décalé vers les basses énergies par rapport au pic réel.

Les calculs sont développés dans l'annexe III, et nous donnons sur la figure I.3. les résultats obtenus.

Spectre d'energie des neutrons primaires issus de la réaction $^{13}C(\alpha n)^{16}O$ avec les α de 5,14 MeV du ^{239}Pu bombardant une " cible épaisse "

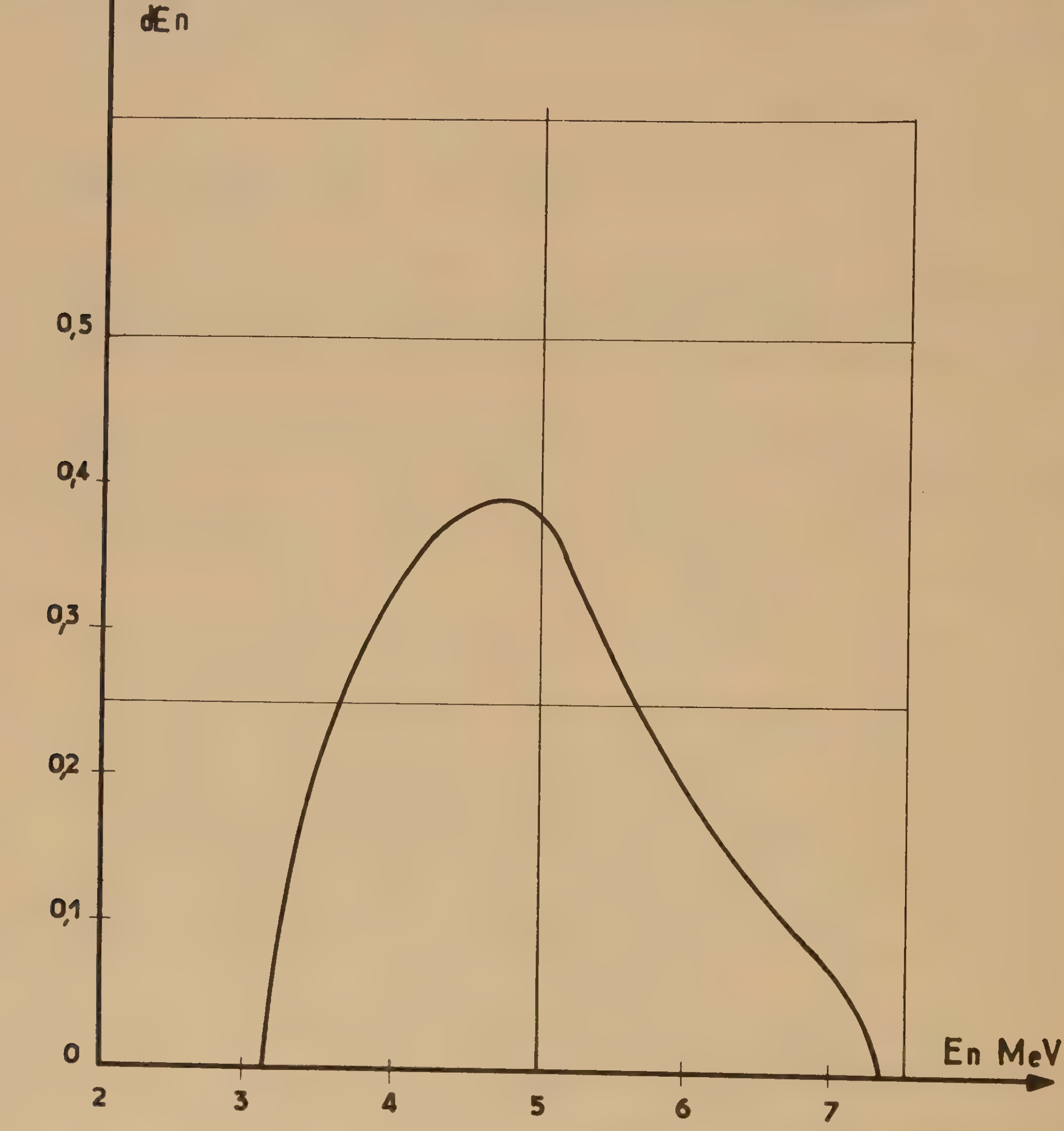


Fig. n° I . 2

Spectre d'energie des neutrons primaires issus de la réaction $^{18}O(\alpha,n)^{21}Ne$ avec les α de 5,14 MeV du ^{239}Pu bombardant une "cible épaisse"

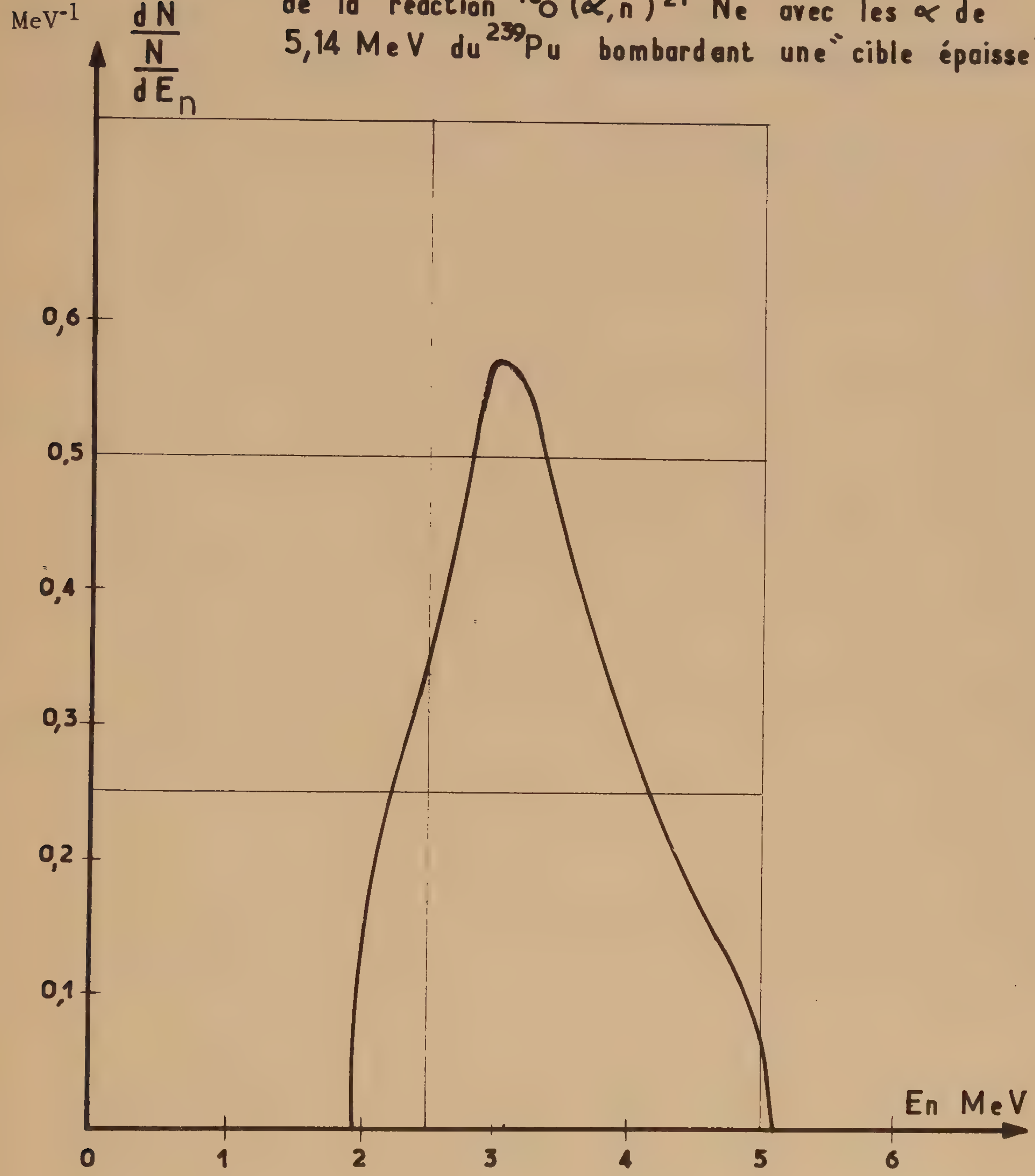


Fig. n° I.3

Réaction $^{17}O(\alpha, n)^{20}Ne$.

La réaction s'écrit :

$$^{17}_{8}O + ^{4}_{2}\alpha \longrightarrow ^{21}_{10}Ne^{*} \longrightarrow ^{20}_{10}Ne + ^{1}_{0}n + 0{,}65\ \text{MeV}.$$

Cette réaction est très voisne de la réaction $^{18}O(\alpha, n)^{21}Ne$ et nous utiliserons le même spectre d'énergie.

I. 2. Calcul des rendements de réaction (α , n) dans des milieux composés.

ROBERTS (annexe IV - [6]) donne les rendements de réaction pour différents noyaux lorsqu'une cible épaisse est bombardée par les particules α de 5,3 MeV du polonium.

Les rendements pour des particules α de 5,14 MeV du plutonium sont voisins des précédents, mais il faut les corriger en fonction du milieu.

I. 2. 1. Détermination de la loi de composition.

Le rendement total d'une réaction (α , n) est fonction de la densité du noyau réactif dans le milieu, du flux de particules α , de leur spectre d'énergie, et de la fonction d'excitation.

Dans l'annexe III nous montrons que le flux de particules est égal au produit de l'activité spécifique par le libre parcours des particules (l'absorption par réaction (α , n) est négligeable).

D'autre part, pour les milieux considérés ultérieurement, le nombre atomique moyen varie très peu, et les pouvoirs d'arrêt $\frac{dE}{dx}$ semblables à ceux du carbone et de l'oxygène, conduisent à des spectres d'énergie voisins.

La fonction d'excitation, pour une réaction déterminée, est évidemment indépendante du milieu.

Nous en déduisons que le rendement d'une réaction (α , n) en milieu composé est sensiblement proportionnel au produit du libre parcours de la particule α par la densité du noyau réactif dans le milieu :

$$\eta = p \, . \, R \, . \, N$$

Cette relation et la règle de BRAGG [11], sur les libres parcours, nous permettent d'écrire le rendement de réaction (α , n) en milieu composé en fonction du rendement, pour le noyau a_i seul :

$$\eta'_{a_i} = \eta_{a_i} \times \frac{1}{\dfrac{\sqrt{A_i}}{M_i} \times \sum_{1}^{n} \dfrac{M_i}{\sqrt{A_i}}}$$

$a_1, \ldots\ldots\ldots\ldots, a_n$ sont les divers éléments du milieu composé

$A_1, \ldots\ldots\ldots\ldots, A_n$ sont les masses atomiques de ces éléments

$M_1, \ldots\ldots\ldots\ldots, M_n$ sont les masses de chaque élément, contenues dans le milieu

η_{a_i} est le rendement de réaction (α , n) pour l'élément a_i seul

η'_{a_i} est le rendement de réaction (α , n) pour l'élément a_i en milieu composé.

Cette relation est démontrée dans l'annexe IV.

La somme des rendements partiels η'_{a_1} ,......, η'_{a_n} de chaque élément réactif constitue le rendement total de réaction (α , n) du milieu composé :

$$\eta'_T = \sum_1^n \eta'_{a_i}$$

I.2.2. Applications numériques.

Tous calculs faits, nous trouvons, dans le cas de solutions aqueuses d'acidité libre 1,5 N, un rendement de 0,05 n/10^6 α , et, dans le cas du solvant à 20 pour cent de T.B.P. et 80 pour cent de dodécane, un rendement de 0,07 n/10^6 α .

CARTWRIGHT [12] a déterminé ces rendements expérimentalement, pour des solutions aqueuses d'acidité libre 2 N, et pour un solvant qu'il ne définit pas.

Il utilise pour cela de petits volumes de solutions (10 ml) contenant 100 mg de plutonium. Les échantillons sont placés dans un bloc en perpex et six compteurs périphériques au trifluorure de bore détectent les neutrons issus de la solution.

Dans le cas de solutions aqueuses il trouve que les taux de comptage, pour des concentrations isotopiques de 3,8 pour cent et 9 pour cent en ^{240}Pu, sont dans un rapport 1,6 ; il en déduit que le rendement de réaction (α , n) dans ce milieu est d'environ 0,05 n/ 10^6 α .

Cette valeur est en parfait accord avec nos calculs.

Dans le cas du solvant, il trouve que le rendement de réaction (α , n) n'est que de 70 pour cent du rendement précédent, soit une valeur moitié de celle que nous avons obtenue.

L'approximation du spectre d'énergie des particules et de la loi de BRAGG, autorisent un écart, dû surtout à la présence d'hydrogène, entre les résultats obtenus par l'expérience et par la relation démontrée précédemment.

Cependant, si nous écartons toute source d'erreur sur les rendements de réaction donnés par ROBERTS, nous aurions dû enregistrer le même écarts pour les deux phases ce qui n'est pas le cas, et il nous semble qu'il faille chercher une autre origine.

D'une part, il se peut que les solvants étudiés ne soient pas les mêmes, mais, d'autre part, nous pensons que l'écart est lié aux conditions expérimentales décrites par CARTWRIGHT.

En effet, dans la géométrie utilisée, les neutrons rapides issus des réactions (α , n) ne sont pas tous thermalisés, et ceci d'autant moins qu'ils ont une énergie primaire plus élevée.

Or, les calculs antérieurs nous ont montré que les neutrons de réactions (α , n) en phase aqueuse sont issus uniquement des réactions avec l'oxygène, et que leur spectre d'énergie est centré sur 3 MeV ; dans le cas du solvant, les neutrons proviennent essentiellement des réactions avec le carbone, et leur spectre d'énergie est centré sur 5 MeV.

Il est donc vraisemblable que le rendement de détection des neutrons issus du solvant était inférieur à celui des neutrons issus de la solution aqueuse, et le rendement de réaction (α , n) est déterminé par défaut.

I.3. Calcul des activités et des spectres d'énergie des neutrons en phase aqueuse et phase solvant, suivant le pourcentage en ^{240}Pu.

L'ensemble des résultats obtenus sur les spectres d'énergie et les rendements de réaction (α , n) nous permet maintenant de définir toutes les caractéristiques des sources de neutrons en phase aqueuse et phase solvant.

Si x est le pourcentage en ^{240}Pu, compte tenu des fissions spontanées et des activités α des isotopes ^{239}Pu et ^{240}Pu, nous trouvons, tous calculs faits :

$A_{solvant} = 158 + 15,3\ x$ n/s/g Fig. I.4.

$A_{aqueux} = 113 + 14,1\ x$ n/s/g Fig. I.5.

Pour des concentrations isotopiques de 3,8 pour cent et 9 pour cent en ^{240}Pu nous trouvons un rapport d'activité de 1,47 en phase aqueuse, assez bien en accord avec le rapport des taux de comptage observé par CARTWRIGHT.

Si nous classons les énergies des neutrons primaires selon la classification à seize groupes, la répartition pour les diverses réactions est données par le tableau I.1.

Tableau I.1.

Réactions	Répartition dans les groupes en %		
	1° groupe ∞ - 3 MeV	2° groupe 3 - 1,4 MeV	3° groupe < 1,4 MeV
^{13}C (α , n) ^{16}O	100 %		
^{18}O (α , n) ^{21}Ne) ^{17}O (α , n) ^{20}Ne)	70 %	30 %	
Fissions spontanées [13] Annexe V	20 %	35 %	45 %

D'où la répartition en énergie des neutrons primaires en phase solvant et phase aqueuse pour diverses concentrations isotopiques (Tableau I.2.).

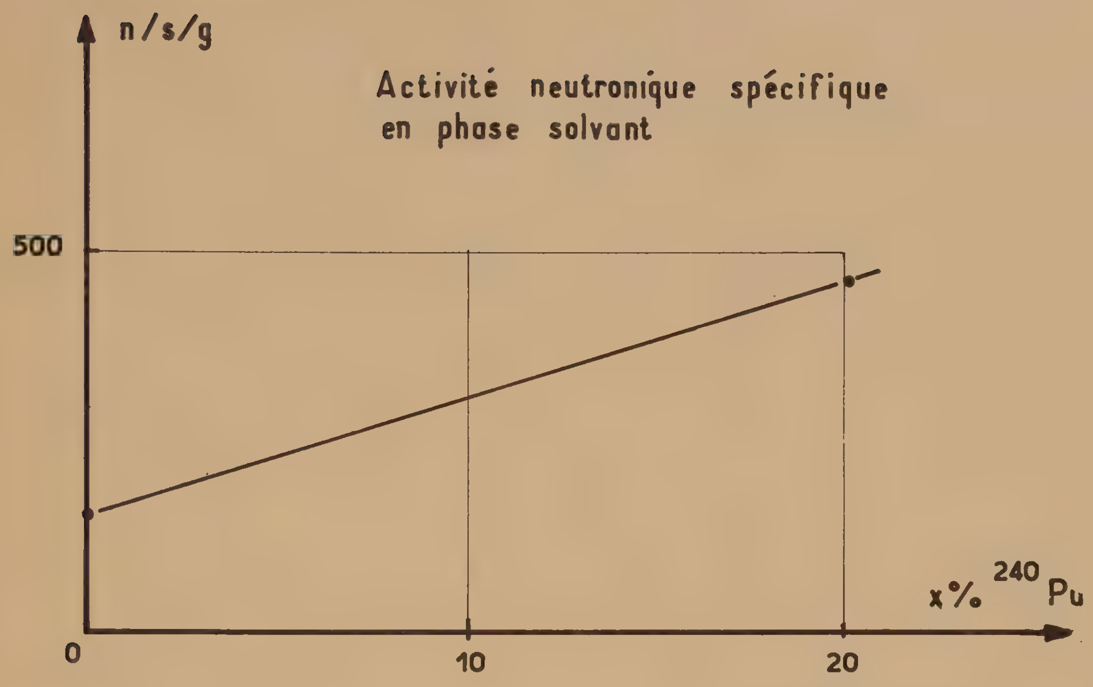


Fig.n° I.4

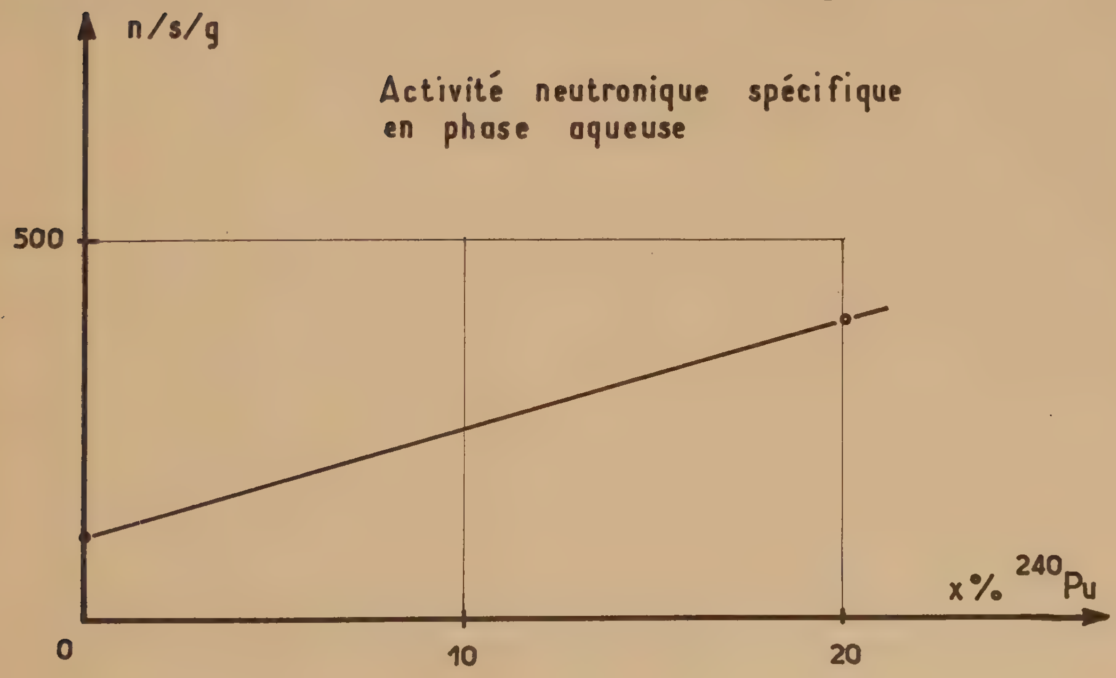


Fig.n° I.5

Tableau I.2.

% ^{240}Pu		1° groupe ∞ - 3 MeV	2° groupe 3 - 1,4 MeV	Energies < 1,4 MeV
1 %	Solvant	90 %	7,5 %	2,5 %
	Aqueux	66 %	30 %	4 %
5 %	Solvant	76 %	13 %	11 %
	Aqueux	55 %	32 %	13 %
10 %	Solvant	68 %	16 %	16 %
	Aqueux	48 %	32 %	20 %

Nous observons qu'à concentrations égales les activités et les énergies des neutrons émis en phase solvant sont supérieures à celles des neutrons émis en phase aqueuse.

D'autre part, le pourcentage en ^{240}Pu a une grande influence sur les activités neutroniques, et il est nécessaire d'en tenir compte dans les corrélations entre taux de comptage et masses de plutonium.

I. 4. Détermination des rendements de détection.

L'activité gamma de la phase aqueuse d'alimentation est de l'ordre du curie/litre, ce qui se traduit, dans les doigts de gant gainés de plomb, par une irradiation inférieure à 10 R/h, et il nous faut choisir un détecteur compatible avec ces conditions.

Deux types de détecteurs sont disponibles : chambres à fission CFU_2, à dépôt d'uranium 235, et compteurs au trifluorure de bore enrichi au bore 10.

Le premier type de détecteur peut être utilisé dans une ambiance gamma maximum de 10^4 R/h, mais il est peu sensible ; le second type de détecteur est beaucoup plus sensible, mais ses caractéristiques évoluent sous rayonnement gamma.

Des essais de longue durée sous des flux variant de 10 R/h à 50 R/h ont montré que les compteurs au BF_3 de faible volume et de basse pression sont susceptibles d'être utilisés sous un flux inférieur à 10 R/h [14].

Ces essais nous ont conduit à choisir le compteur au BF_3 du type 1,5 NE 12, de sensibilité 1,5 choc/neutron/cm^2, soit une sensiblité dix fois plus grande que celle des chambres à fission CFU_2.

Nous avons placé un compteur par étage de la batterie d'extraction VI, et chacun d'entre eux compte les neutrons provenant des diverses phases contenues dans les mélangeurs et décanteurs adjacents.

La géométrie étant répétitive, nous avons déterminé expérimentalement les rendement de détection pour chacun de ces volumes, en reproduisant la géométrie d'un étage (figure I.6.).

Le plutonium réparti des les phases est simulé à l'aide d'une source ponctuelle d'américium-béryllium d'activité 700 000 n/s, positionnée en de nombreux points des volumes.

Le spectre d'énergie des neutrons primaires centré sur 5 MeV, est assez bien représentatif des spectres en phase aqueuse et phase solvant. Les neutrons primaires issus du plutonium en phase aqueuse ou phase solvant, ainsi que ceux issus de la source Am - Be, perdent une grande partie de leur énergie dans la solution, et l'ensemble détecteur - réflecteur, sensible aux neutrons situés dans la bande d'énergie inférieure à 1,4 MeV, les détecte avec des rendements voisins.

La chaîne de comptage est composée d'éléments standard C.E.A. : compteur au BF_3 du type 1,5 NE 12, préamplificateur sensible à la charge du type PADIT, ensemble discriminateur - amplificateur - ictomètre du type ADIT, de bande passante 3 MHz.

Nous avons déterminé les rendements de détection des neutrons issus d'une couche d'épaisseur dz, à l'altitude z, pour chacun des mélangeurs et décanteurs adjacents.

Ces rendements, que nous définissons par la fonction $\phi_{(z)}$, sont donnés pour deux positions du détecteur dans le doigt de gant sur les figures I.7. et I.8.

Nous avons observé que les taux de comptage peuvent être calculés, avec une bonne approximation par les relations simplifiées :

Rendement de détection dispositif expérimental

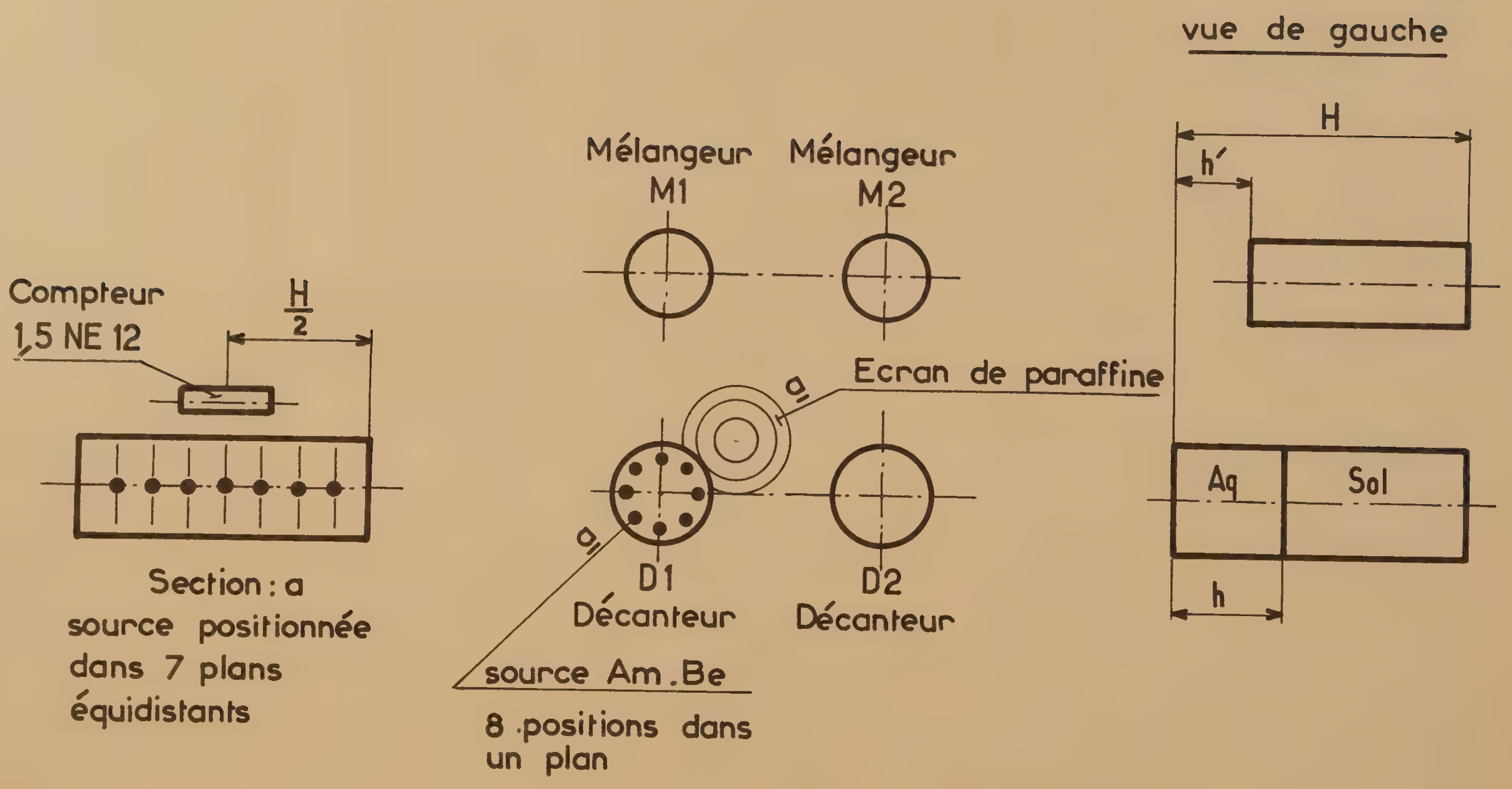


Fig. nº I 6

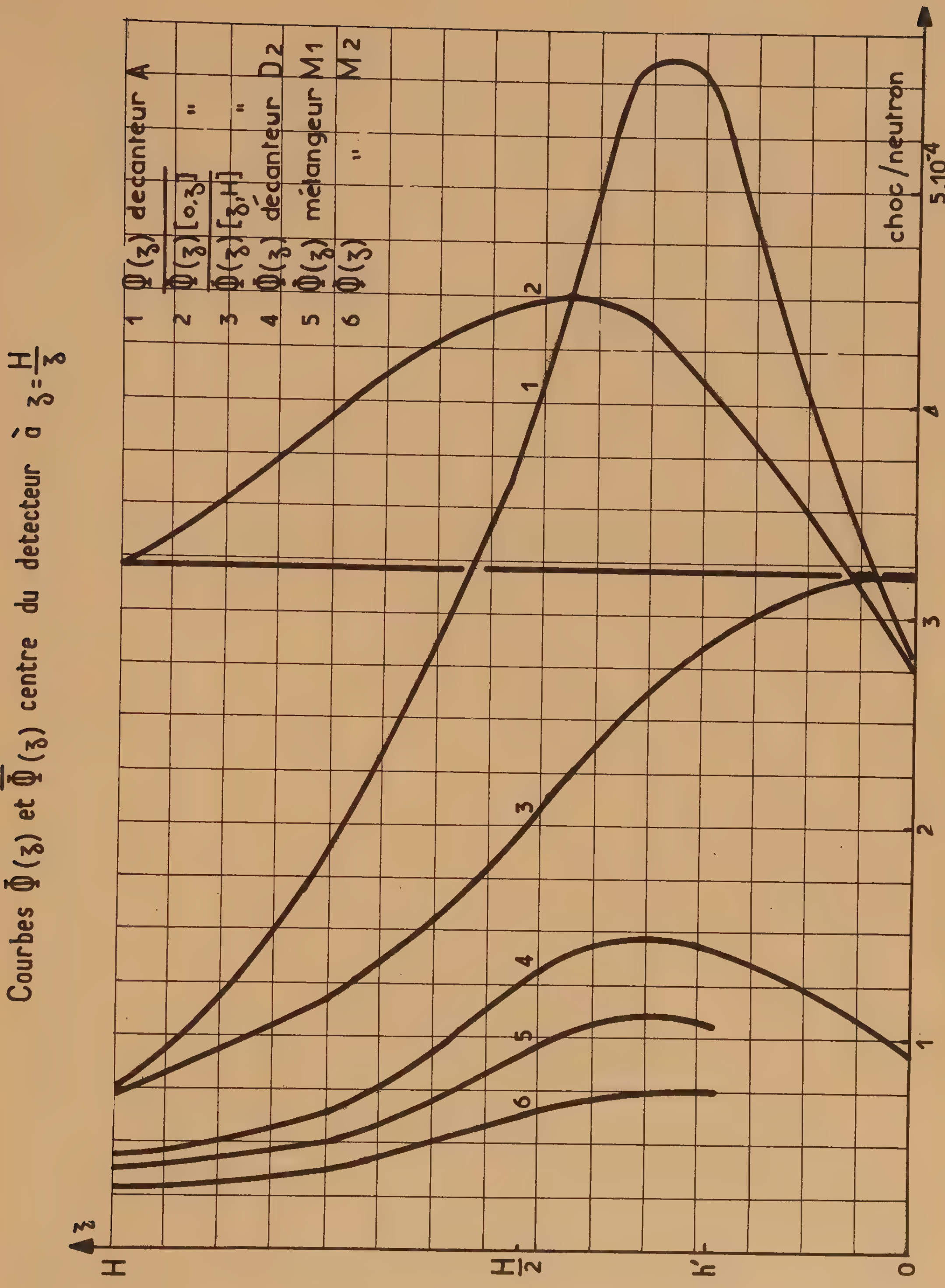

Courbes $\Phi(z)$ et $\bar{\Phi}(z)$ centre du detecteur à $z = \frac{H}{z}$
1 $\Phi(z)$ decanteur A
2 $\bar{\Phi}(z)[0,z]$ "
3 $\bar{\Phi}(z)[z,H]$ "
4 $\Phi(z)$ décanteur D2
5 $\Phi(z)$ mélangeur M1
6 $\Phi(z)$ " M2
choc/neutron
5.10^{-4}
4
3
2
1
H
$\frac{H}{2}$
h'
0
z

Fig. n° I.7

Courbes $\Phi(z)$ et $\overline{\Phi}(z)$ centre du detecteur à $z = \frac{H}{2}$

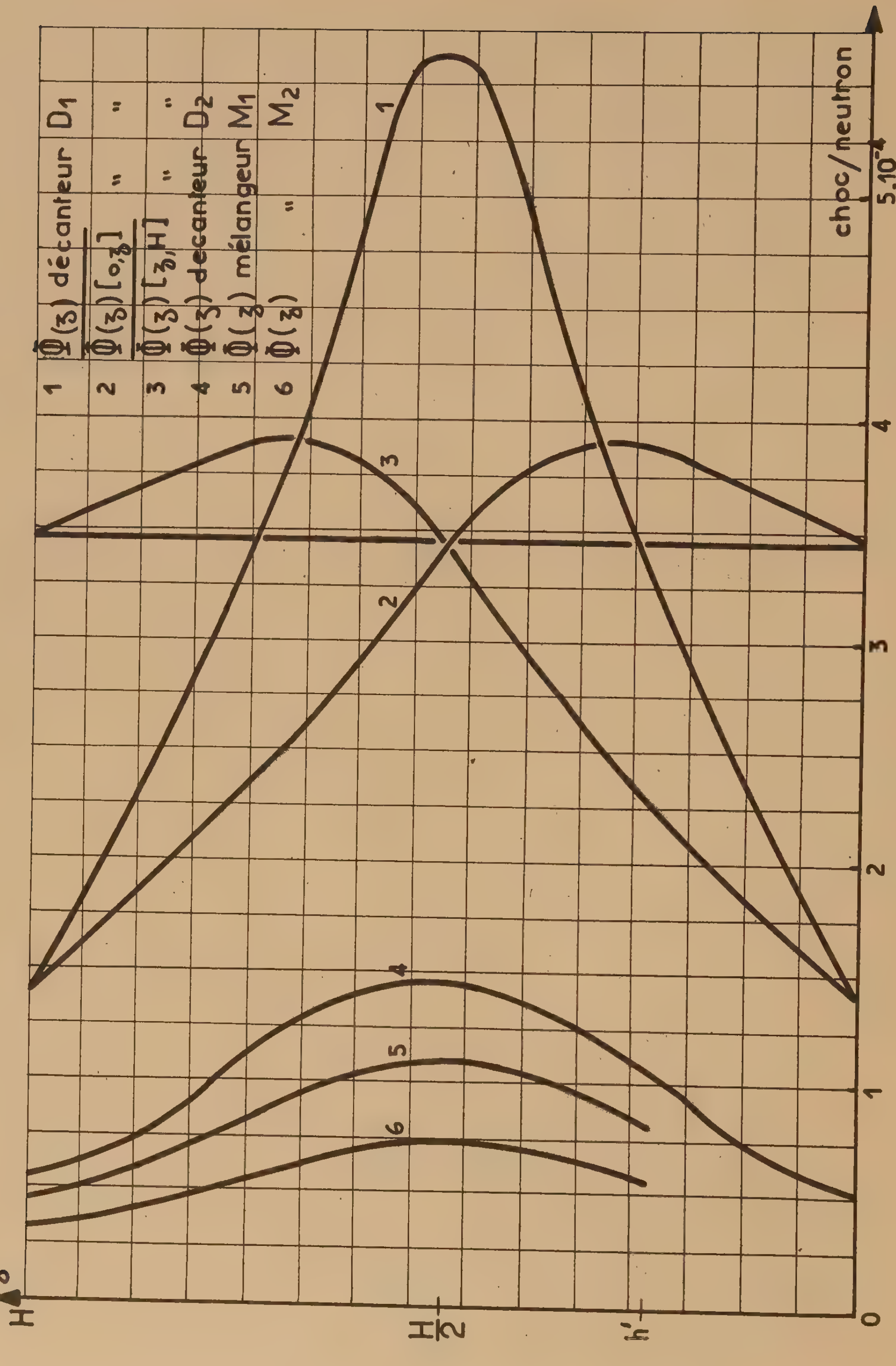


Fig. n° I.8

$$N_D = \left(\frac{A_A + A_S}{2}\right) (M_A + M_S) \; \overline{\phi_D}$$

$$N_M = \left(\frac{A_A + A_S}{2}\right) M_M \; \overline{\phi_M}$$

N_D et N_M sont les taux de comptage correspondants aux décanteurs et aux mélangeurs.

A_A et A_S sont les activités neutroniques spécifiques en phase aqueuse et phase solvant.

M_A et M_S sont les masses de plutonium contenues en phase aqueuse et phase solvant dans un décanteur.

M_M est la masse de plutonium contenue dans un mélangeur

$\overline{\phi_D}$ et $\overline{\phi_M}$ sont les valeurs moyennes de ϕ_z.

Nous indiquons dans le tableau I.3. les rendements de détection moyens $\overline{\phi_D}$ et $\overline{\phi_M}$.

Tableau I.3.

Rendements de détecteur moyens en choc / neutrons.

Niveau du détecteur	$\overline{\phi}_{D_1}$	$\overline{\phi}_{D_2}$	$\overline{\phi}_{M_1}$	$\overline{\phi}_{M_2}$
$\frac{H}{3}$	$0{,}32 \cdot 10^{-3}$	$0{,}09 \cdot 10^{-3}$	$0{,}07 \cdot 10^{-3}$	$0{,}05 \cdot 10^{-3}$
$\frac{H}{2}$	$0{,}35 \cdot 10^{-3}$	$0{,}1 \cdot 10^{-3}$	$0{,}08 \cdot 10^{-3}$	$0{,}06 \cdot 10^{-3}$

En conclusion, nous voyons, que la probabilité moyenne de réaction (α, n) est de $6 \cdot 10^{-8}$, et que la probabilité de détecter le neutron émis dans la géométrie considérée est au mieux de 3.10^{-4}, soit au total une sensibilité en choc par noyau de plutonium désintégré de $18 \cdot 10^{-12}$.

Compte tenu des fissions spontanées, à 1 curie de plutonium correspond, dans ces conditions, un taux de comptage de l'ordre de 1 choc/s.

I. 5. Corrélation expérimentale des taux de comptage et des masses de plutonium contenues dans la batterie.

Pour déterminer les masses de plutonium contenues dans la batterie nous devons connaître les volumes et les concentrations des phases.

Les concentrations sont données par analyses avec une précision de 5 pour cent et les volumes sont calculés en tenant compte du niveau d'interphase.

En écrivant l'équation d'équilibre des pressions dans un décanteur, nous obtenons, d'après la figure I. 9. :

$$h = \frac{x D - h d}{D - d}$$

h : niveau d'interphase recherché

x : position du déversoir (connue)

d : densité de la phase solvant

D : densité de la phase aqueuse.

Le volume connu du décanteur, et h, permettent de calculer les volumes de chaque phase.

Les densités sont déterminées par les formules empiriques suivantes :

$$D = 1 + 0,03\ N + 0,0014\ \left([U] + [Pu] \right)$$

$$d = d' + (0,394 - 0,086\ d')\ \frac{[U] + [Pu]}{238} + (0,063 - 0,046\ d')\ N$$

N : normalité HNO_3 1,5 en phase aqueuse
0,2 en phase solvant

[U] et [Pu] concentrations en uranium et plutonium en g/l

d' = 0,8 pour un solvant à 20 pour cent de T.B.P.

Dans le cas des mélangeurs, les concentrations dans les phases sont déterminées en tenant compte du circuit suivi par les solutions. Les volumes de phase sont proportionnels aux débits de ces phases, et le volume total est connu.

Schéma d'un décanteur

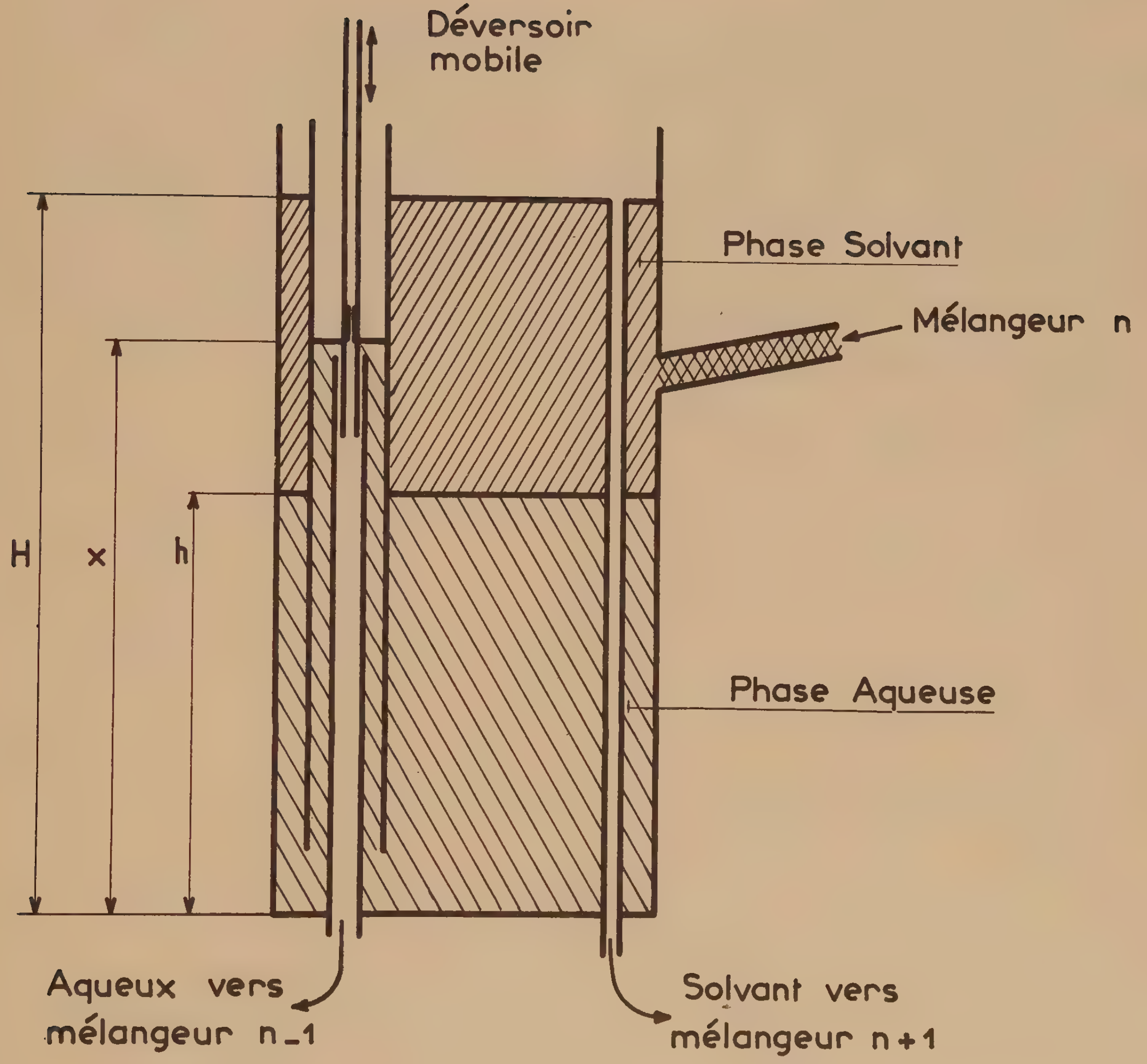


Fig. n° 19

RESULTATS.

L'expérience montre que c'est surtout dans les étages 3 à 8 que la rétention en plutonium varie en fonction des fluctuations des paramètres d'entrée de la batterie, c'est pourquoi nous avons pensé à corréler la somme des masses de plutonium contenues dans ces étages avec la somme des taux de comptage correspondants.

Plus de 400 analyses sur des solutions actives ont permis d'établir les résultats indiqués sur la figure I. 10.

Nous voyons que la relation entre les taux de comptage et les masses de plutonium est une loi sensiblement linéaire, à 10 pour cent près, ce qui constitue une bonne corrélation, compte tenu des difficultés de détermination des masses de plutonium.

Des applications numériques des relations du paragraphe I. 4. donnent des taux de comptage très voisins de ceux observés expérimentalement et confirment le fait que l'interférence de plusieurs étages sur le taux de comptage d'un détecteur, s'élimine lorsque l'on corrèle la somme des taux de comptage avec la rétention totale de plutonium dans les étages. Nous ne pouvons donner le détail de ces applications numériques qui sont classées, mais la concordance finale des résultats expérimentaux et théoriques semble valider la totalité des travaux.

Correlation de la retention totale et de la somme des taux de comptage des étages 5-6-7-8

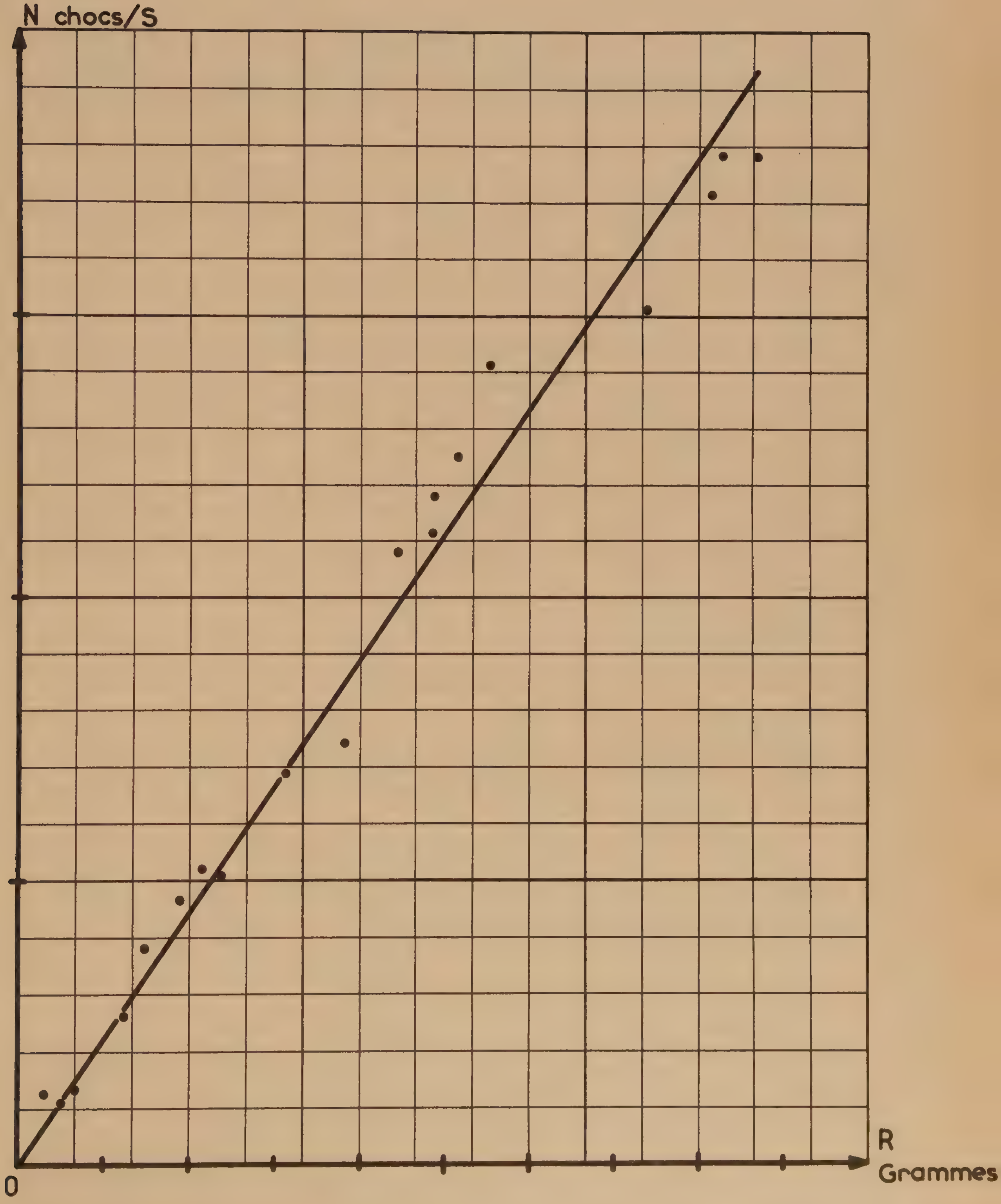


Fig. n° I 10

CHAPITRE II

THEORIE ELEMENTAIRE DE LA BATTERIE D'EXTRACTION VI.

GENERALITES.

L'étude précédente a montré qu'il est possible de mesurer avec une bonne précision la rétention en plutonium dans la batterie par comptage neutron.

Il nous faut maintenant déterminer les lois qui lient la rétention en plutonium et l'état de saturation du solvant, afin de concevoir un système de contrôle optimal de cette saturation.

De nombreuses difficultés sont à surmonter dans le cas d'une recherche théorique des conditions d'extraction de l'uranium, du plutonium, et des produits de fission.

La plus grande d'entre elles, dans le cas de l'extraction VI, réside dans l'interférence des concentrations en uranium et plutonium sur les coefficients de partage de chacun de ces éléments. En effet, à notre connaissance, il n'existe aucune donnée fondamentale précise sur les rappors des concentrations en phase solvant et en phase aqueuse (coefficient de partage) dans le cas où les concentrations en plutonium sont du même ordre de grandeur que celles de l'uranium, et il est impossible dans ces conditions de prédéterminer d'une manière absolue les conditions d'extraction des éléments considérés.

Devant cette carence, nous avons été contraints d'utiliser une méthode expérimentale pour définir les conditions de fonctionnement de l'extraction VI.

Les essais réalisés, ainsi que l'analyse des résultats d'exploitation en usine, nous ont permis de cerner le problème, et d'établir des relations bien représentatives du fonctionnement statique et dynamique de la batterie.

II.1. Description des essais statiques et dynamiques de la batterie d'extraction VI.

En boucle ouverte, c'est-à-dire sans contrôle automatique, les relevés d'exploitation montrent que les évolutions sont très lentes, et que la plage de variation de la rétention en plutonium est très grande - (fig. II.1.).

Cette observation peut constituer a priori une objection à la recherche d'un contrôle automatique, l'homme étant tout à fait adapté dans ce cas pour agir sur le procédé.

En fait, il n'en est rien, car si le système évolue lentement en fonction des variations des paramètres d'entrée, il réagit de la même manière aux variations du paramètre de commande, et l'expérience nous a montré, que dans les conditions d'exploitation industrielles, la correction humaine est alors imparfaite, tant du point de vue quantité d'action que du point de vue temps de réponse.

Ceci étant dit, l'ensemble des résultats d'exploitation ne permettait pas de mettre clairement en évidence l'influence des variations de débit sur la rétention en plutonium, les phénomènes étant masqués par des variations de concentrations d'entrée.

C'est pourquoi nous avons réalisé quelques essais de variations de débit, après avoir ajusté un grand volume de solutions aqueuses et solvant, correspondant à environ cent heures de marche de la batterie, aux concentrations moyennes de fonctionnement.

Les débits aqueux (symboles A et L) sont constants, et nous opérons des variations en échelon du débit solvant (symbole S), choisi comme paramètre de commande.

La figure II.2. décrit l'évolution de la rétention en plutonium durant toute la durée des essais.

Essais n° 1 (fig. II.3.).

Nous avons réglé $\frac{S}{A}$ à 1,8, ce qui correspond à un état peu chargé du solvant, et entraîne une faible rétention en plutonium dans les étages 3 à 8. Il n'y a pas de fuite en plutonium dans le raffinat, mais le facteur de décontamination est mauvais.

Nous avons ensuite réglé $\frac{S}{A}$ à 1,68.

La baisse de débit solvant s'est traduite par une montée de concentration en uranium et plutonium dans tous les étages, et un nouvel état d'équilibre stable s'est établi sans perte en plutonium dans le raffinat.

Dans le cas le solvant est bien chargé et extrait peu de produits de fissions.

Essais n° 2 (fig. II.4.).

Après maintien de l'équilibre précédent, durant cinq heures, nous avons réglé $\frac{S}{A}$ à 1,53 durant douze heures.

Cette nouvelle baisse de débit solvant s'est traduite par une baisse rapide de concentration en plutonium de l'extrait et par une montée brutale de la rétention dans les étages d'extraction.

Variations de la rétention en plutonium des étages
5 - 6 - 7 - 8 de la batterie non régulée

$\frac{S}{A}$	1,745	1,68 /1,605	1,605	1,605	1,605	1,605	1,605	1,680	1,790
(U)e g/e	83	83	81,1	82,9	82	82,2	80	82	79
(Pu)e g/e	7,7	7,1	8,5	6,8	8,9	7,2	10,7	8,7	9,9
(U)e + (Pu)e	90,7	90,1	89,6	89,7	90,9	89,4	90,7	90,7	88,9

o rétention déterminée par analyse

– rétention déterminée par comptage neutron

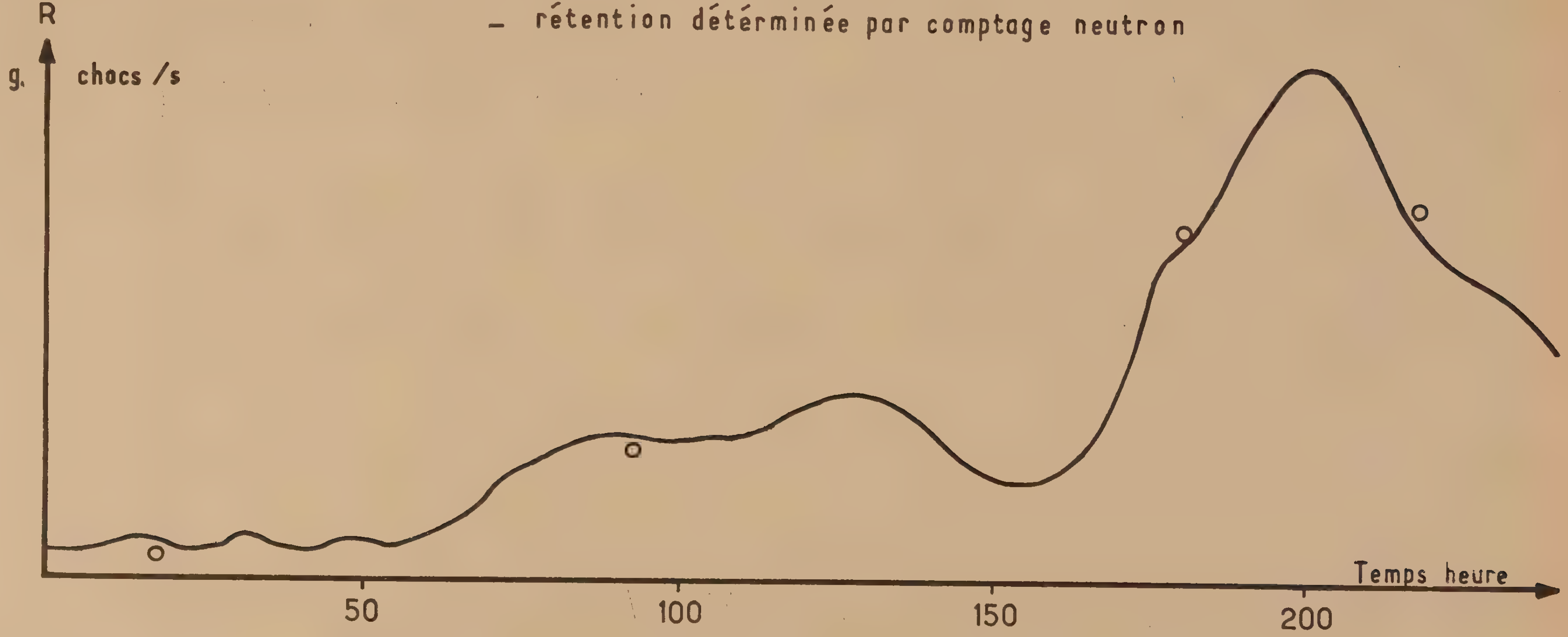


Fig. II.1

Essais dynamiques de la batterie VI - Essais n° 1 et 2
Réponse à des échelons de débit solvant

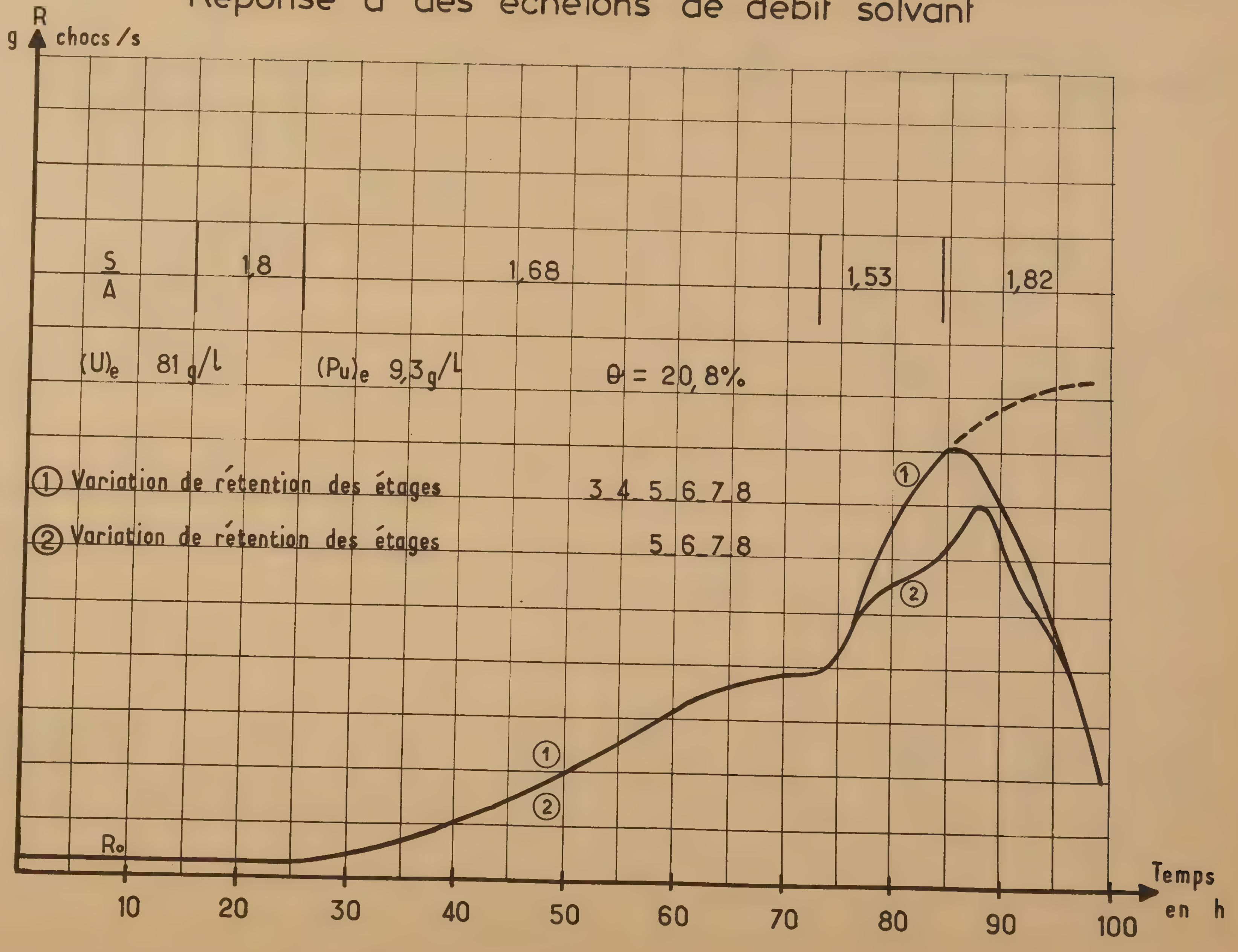


Fig. n° II 2

Essais dynamiques – Essai n° 1.
Profils des concentrations dans les étages

courbe ① $\frac{s}{a} = 1,8$

courbe ② $\frac{s}{a} = 1,68$

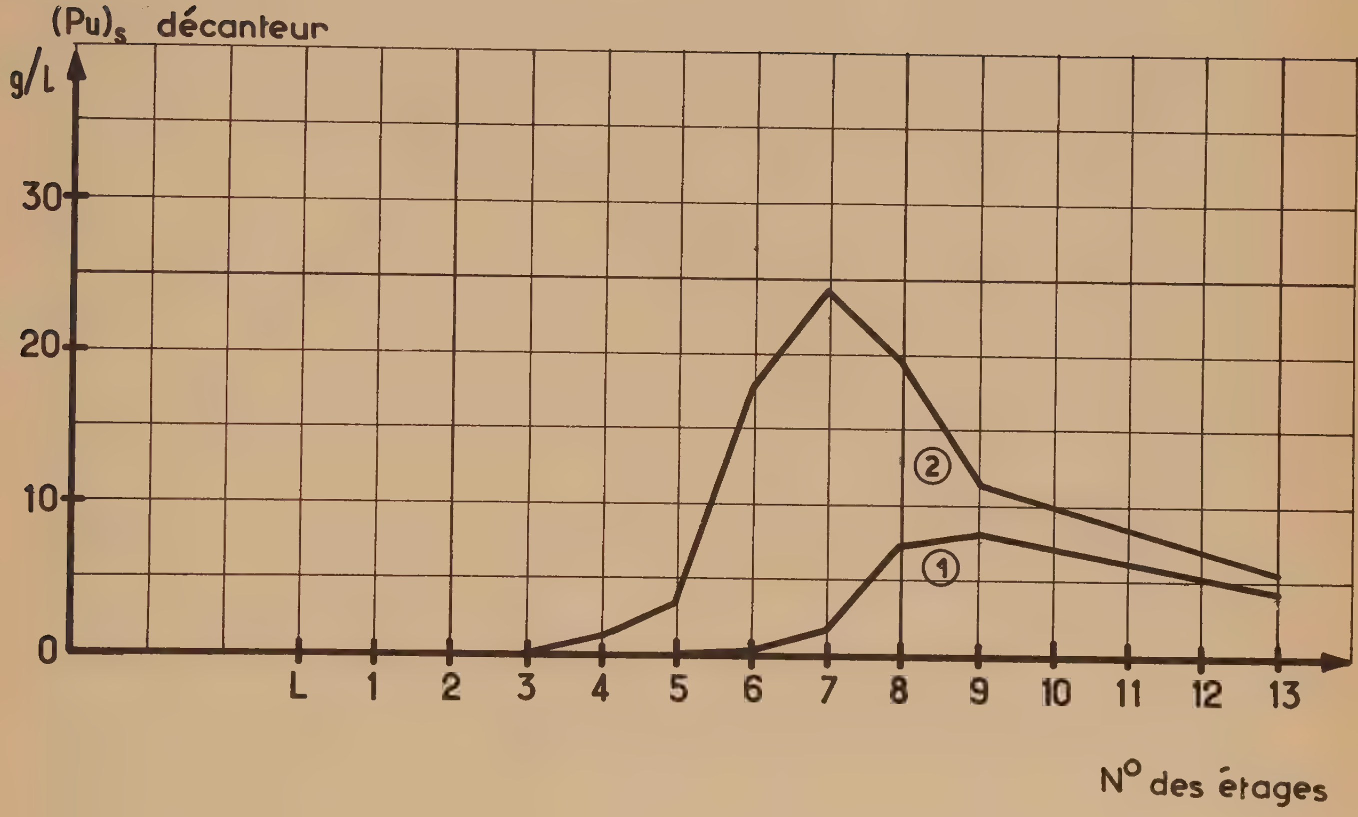


Fig. n° II 3

Caractéristiques dynamiques - Essai n°2

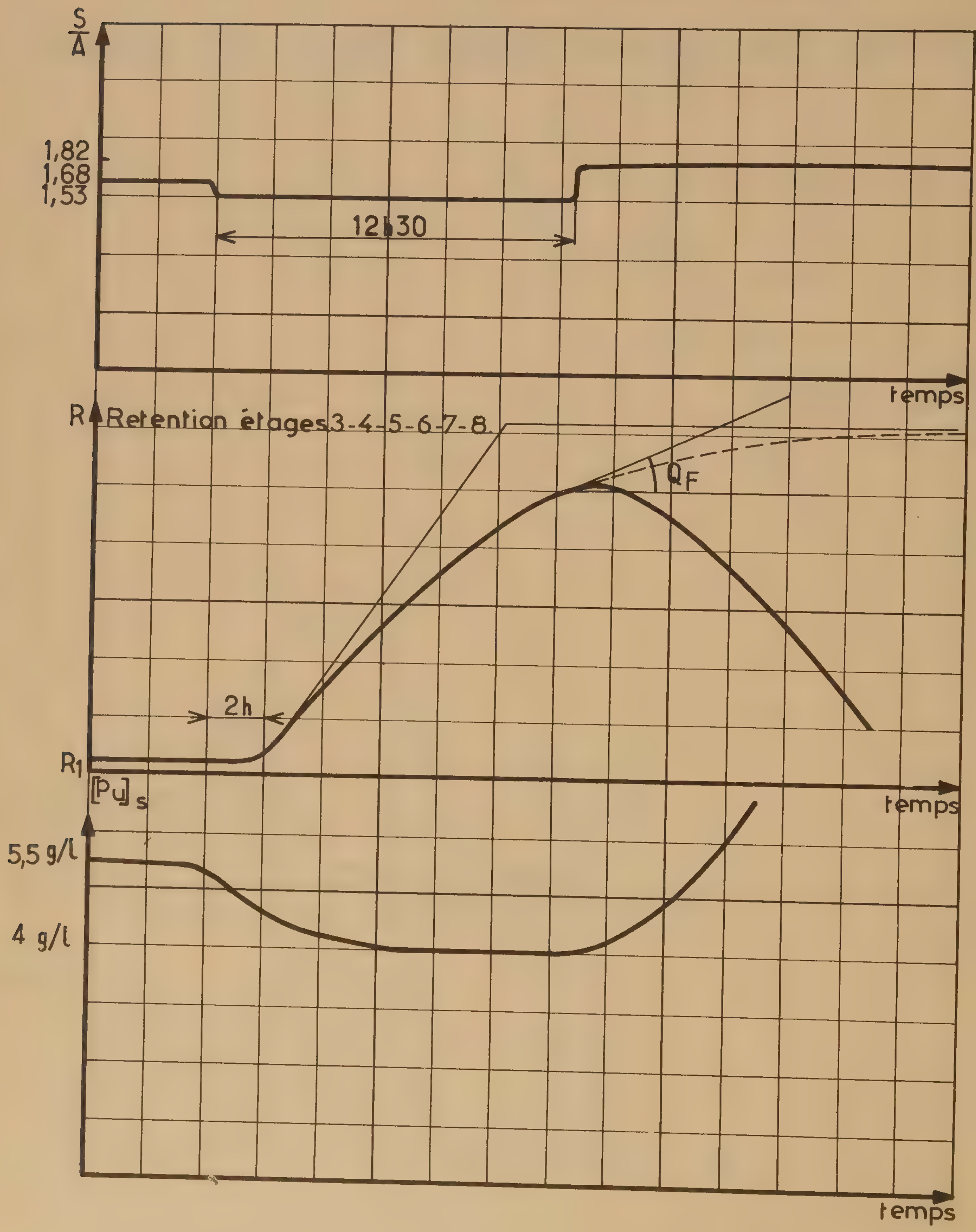


Fig. n° II 4

Le comportement de la batterie a été tout à fait différent que précédemment : une partie du plutonium contenu dans les étages de lavage et dans l'étage d'introduction a reflué vers les "pieds de colonne", et un calcul de bilan montre que la rétention horaire en plutonium est égale à 25 pour cent de la quantité entrante.

Ce fonctionnement est caractéristique de l'approche de la saturation du solvant à l'étage d'introduction : comme le solvant a une affinité plus grande pour l'uranium que pour le plutonium, le premier élément chasse le second vers les pieds de colonne jusqu'à ce que s'établisse un équilibre avec perte de plutonium dans le raffinat.

L'accroissement brutal de la rétention nous a obligé à cesser l'essai avant que les pertes dans le raffinat soient excessives, et le rapport $\frac{S}{A}$ a été porté à 1,82 jusqu'à ce que la rétention décroisse.

Nous n'avons pas étudié l'influence du lavage sur la saturation du solvant et le facteur de décontamination. Le rapport nominal des débits lavage et solvant est fixé à 0,27, et l'acidité libre du lavage est ajustée à 1,5 N HNO_3.

II. 2. Définition de la saturation du solvant.

D'après les essais précédents nous distinguons deux modes de fonctionnement de la batterie : régime avec solvant peu chargé, sans fuite en plutonium dans le raffinat, et régime avec solvant très chargé, proche de la saturation, avec fuite en plutonium dans le raffinat.

Dans le premier mode, à l'équilibre, les concentrations de sortie en uranium et plutonium ne dépendent que des concentrations respectives d'entrée, et des conditions opératoires.

Il n'en est plus de même dans le second mode, où les concentrations de sortie sont dépendantes, suivant une loi que nous appellerons loi de saturation.

Dans des conditions d'entrée déterminées, il existe un rapport de débit solvant et aqueux qui délimite les deux modes.

Dans le cas où le solvant est proche de la saturation, nous observons expérimentalement que la relation de dépendance entre les concentrations en uranium et plutonium de l'extrait est une loi sensiblement linéaire.

$$[U]_S + \frac{[Pu]_S}{a} = \frac{K\,\theta}{\theta_o}$$

a : est fonction des coefficients de partage de l'uranium et du plutonium ; il caractérise l'affinité relative du solvant chargé pour les deux éléments à extraire.

K : constante de charge du solvant à θ_o pour cent de T.B.P. pour la batterie d'extraction VI ; elle est inférieure à la valeur de la concentration de saturation en uranium du solvant à θ_o pour cent de T.B.P. (87 g/l pour θ_o = 20 pour cent).

θ_o : titre normal en T.B.P. du solvant.

θ : titre en T.B.P. du solvant.

Nous appelons cette relation loi de saturation.

Le rapport $\frac{S}{A}$ limite des deux modes de fonctionnement est tel que le solvant chargé extrait tout l'uranium et le plutonium.

Si $(Pu)_e$ et $(U)_e$ sont les concentrations de la phase aqueuse d'entrée, ces conditions s'écrivent :

$$\left.\begin{array}{l} A_C\,(Pu)_e = S_C\,(Pu)_s \\ \\ A_C\,(U)_e = S_C\,(U)_s \end{array}\right) \text{ bilan uranium et plutonium.}$$

$$(U)_s + \frac{(Pu)_s}{a} = \frac{K\,\theta}{\theta_o} \quad \text{) loi de saturation.}$$

Nous en déduisons le rapport $(\frac{S}{A})_C$ critique :

$$(\frac{S}{A})_C = \frac{((U)_e + \frac{(Pu)_e}{a}) \, \theta_o}{K \, \theta}$$

La recherche de a et K est malaisée parce que nous ne connaissons pas la valeur exacte du titre en T.P.B. dans la plupart des cas ; comme ce titre varie entre 20 et 22 pour cent, c'est une cause d'erreur importante. De plus nous possédons très peu de valeurs de concentrations correspondant à des équilibres avec fuite dans le raffinat, ce qui rend tout calcul statistique rigoureusement impossible.

Les valeurs approchées a = 0,52 et K = 59 g/l sont les mieux en accord avec l'ensemble des résultats d'exploitation recueillis (θ_o = 20 pour cent).

II.3. Etude du fonctionnement sans fuite de plutonium dans le raffinat.

II.3.1. Loi d'équilibre de la rétention en plutonium.

Au rapport $(\frac{S}{A})_C$ correspond une rétention critique R_C dans les étages d'extraction, sans fuite importante de plutonium dans le raffinat.

La valeur numérique de R_C est une information classée, et tous les calculs ultérieurs seront effectués en valeurs relatives.

L'expérience montre que la variation de débit solvant faisant passer la rétention de la valeur zéro à la valeur critique est d'environ 10 pour cent, et nous exprimons la rétention d'équilibre pour des conditions opératoires sous critique par interpolation linéaire entre ces bornes.

La loi de saturation, la loi d'équilibre, et certains résultats dynamiques expérimentaux permettent de calculer le comportement de la batterie d'extraction suivant les variations des paramètres d'entrée, puis de déterminer les caractéristiques de la chaîne de régulation.

L'interprétation simplifiée des phénomènes observés et les approximations linéaires conduisent à des résultats approchés, et il est nécessaire de les comparer aux résultats expérimentaux obtenus après régulation.

II.3.2. Evolution de la rétention en plutonium pour des variations des conditions d'entrée.

Les perturbations essentielles sont de trois types : variations des concentrations de la phase aqueuse d'alimentation, variations des débits, variation du titre du T.B.P. du solvant.

L'expérience montre que lorsque la concentration d'entrée en plutonium varie, la concentration de l'extrait évolue avec un retard sensiblement égal au temps de renouvellement des volumes morts de la section de lavage, et une constante de temps T, variable, de mise en équilibre.

En première approximation, en ne tenant pas compte du retard, de l'ordre d'une heure, ni de la faible variation de rétention dans la section de lavage et dans l'étage d'introduction, si R_1 et R_2 sont les états initiaux et finals de la rétention en plutonium, calculés à l'aide de la loi d'équilibre, $[Pu]_{e_1}$ et $[Pu]_{e_2}$ les concentrations d'alimentation, $[Pu]_{S_1}$ et $[Pu]_{S_2}$ les concentrations correspondantes de l'extrait, un calcul très simple de bilan montre:

$$R = R_1 + (R_2 - R_1)\,(1 - e^{-\frac{t}{T}})$$

$$T = \frac{R_2 - R_1}{S\,([Pu]_{S_2} - [Pu]_{S_1})} = \frac{R_2 - R_1}{A\,([Pu]_{e_2} - [Pu]_{e_1})}$$

T, terme principal du régime transitoire est fonction de l'état initial, lié aux conditions opératoires et aux concentrations d'alimentation, et de l'amplitude de la perturbation.

Dans le cas de variations de débit solvant, le calcul aboutit aux mêmes relations.

Nous ne pouvons pas donner la loi d'évolution pour une variation de titre en T.B.P., car ce phénomène n'a pas été étudié expérimentalement.

II. 4. Etude du fonctionnement avec fuites de plutonium dans le raffinat.

Ce régime est défini par $\frac{S}{A} < (\frac{S}{A})_C$. Le passage d'un état d'équilibre peu chargé à un état avec fuites en plutonium dans le raffinat est un phénomène complexe, difficile à expliciter mathématiquement.

Il y a eu accumulation dans l'étage d'entrée et reflux vers les étages d'extraction d'une partie du plutonium contenu dans la section de lavage, puis il s'est établi un engorgement horaire constant.

Le calcul de l'engorgement horaire donne :

$$Q_F = \frac{dR}{dt} = A \left([Pu]_e + a \, [U]_e \right) (1 - \alpha) = cte$$

avec :

$$\frac{S}{A} = \alpha \left(\frac{S}{A}\right)_C \qquad\qquad \alpha < 1.$$

CHAPITRE III
ETUDE DE LA REGULATION DE LA BATTERIE D'EXTRACTION VI

GENERALITES.

Le problème à résoudre consiste à maintenir le solvant dans un état stable de saturation, afin d'optimaliser les performances de la batterie d'extraction.

Les calculs précédents nous ont montré que pour des conditions d'entrée données, il existe un rapport critique des débits solvant et aqueux à partir duquel les fuites en plutonium dans le raffinat deviennent supérieures aux fuites irréductibles de plutonium à la valence III, insolubles dans le solvant (quelques mg/l).

Cette valeur critique qui détermine la valeur maximum du facteur de décontamination, compatible avec des fuites modérées dans le raffinat, constitue le rapport optimum de fonctionnement. Pour maintenir ces conditions optimum, quelles que soient les variations des paramètres d'entrée, nous pouvons réguler le rapport des débits solvant et aqueux en fonction de la rétention en plutonium dans la batterie.

Le débit aqueux est fixé par la cadence de production usine, et la meilleure manière de réguler le rapport des débits consiste à faire varier le débit solvant autour de sa valeur nominale, en fonction des écarts de la rétention par rapport à une rétention de consigne, légèrement inférieure à la rétention critique.

La chaîne de régulation à réaliser doit concilier trois données importantes : l'information provenant des détecteurs de neutrons, de nature impulsionnelle, est soumise à des fluctuations statistiques, et est sensible aux parasites usine ; le système à réguler est caractérisé par des constantes de temps de l'ordre de plusieurs heures, et possède un gain propre élevé.

Ces trois aspects, impliquent obligatoirement que la chaîne de régulation soit précise et de dérive faible, et que l'information provenant des détecteurs soit filtrée pour éliminer au mieux les parasites usine.

L'action de la chaîne de régulation ne doit pas comporter de terme dérivé, et un terme intégral, de conception délicate, n'est pas souhaitable à cause des risques d'instabilité.

Il semble donc, dès le départ, qu'il faille se restreindre à une régulation proportionnelle, et accepter du même coup qu'il y ait toujours un écart entre la rétention et la valeur de consigne.

Dans la mesure où cet écart reste compris dans une plage telle que le solvant soit toujours suffisamment saturé, et que les fuites en plutonium soient inférieures à 10 mg/l, la régulation proportionnelle peut être envisagée, et nous allons étudier le comportement de la batterie régulée dans cette hypothèse.

III.1. <u>Calcul du point d'équilibre.</u>

Si le rapport des débits nominaux est $(\frac{S}{A})_o$ et si R_o est la valeur de consigne de la rétention en plutonium, la loi de débit dans le cas d'une régulation proportionnelle de gain k s'écrit :

$$\frac{S}{A} = (\frac{S}{A})_o - \frac{k}{A}(R_o - R)$$

k en l de solvant / h / g.

Cette loi, associée à la loi d'équilibre en régime libre, permet de calculer la rétention d'équilibre en boucle fermée.

Nous réglons $(\frac{S}{A})_o$ à la valeur critique pour les conditions moyennes d'entrée, soit :

$[U]_e$ = 80 g/l. $[Pu]_e$ = 10 g/l. θ = 21 pour cent

D'où :

$$(\frac{S}{A})_o = 1,6.$$

Les résultats donnés dans l'annexe I nous montrent qu'une saturation du solvant à 65 pour cent suffit pour améliorer nettement le facteur de décontamination.

Ce taux de saturation est obtenu à l'étage de sortie pour une rétention de 0,85 R_C, qui détermine, a fortiori, une saturation plus élevée à l'étage d'introduction.

Nous choisissons cette valeur comme point de consigne, afin d'avoir une bonne marge de sécurité sur les fuites en plutonium dans le raffinat, et nous calculons le gain k de telle sorte que la rétention d'équilibre reste dans la plage (R_C, 0,7 R_C) pour les variations extrêmes des conditions d'entrée ($[Pu]_e$ variant de 5 à 15 g/l et θ variant de 20 à 22 pour cent).

Nous trouvons $\frac{k}{A} = 1,6 \cdot 10^{-3}$ / g, ce qui correspond à une variation de 10 pour cent du solvant pour l'écart maximum.

III.2. Evolution de la rétention en plutonium correspondant à une variation des concentrations d'entrée.

La batterie étant régulée, l'équilibre final correspond à un échelon de concentration d'entrée, partiellement compensé par un échelon de débit solvant.

En boucle ouverte, la loi d'évolution expérimentale de la concentration en plutonium de l'extrait est définie par une constante de temps T pour ces deux types de perturbations, et nous supposons que cette loi est encore vérifiée lorsque la batterie est régulée.

Cette hypothèse, quoique peu orthodoxe, parce que formulée a priori, semble proche de la réalité, et nous permet de calculer le terme principal du régime transitoire en plutonium.

L'équation différentielle qui régit la rétention en plutonium s'écrit alors :

$$\frac{dR}{dt} + R \left(\frac{1}{\tau_2} - \frac{\tau_1 - \tau_2}{\tau_1 \cdot \tau_2} e^{-\frac{t}{T}} \right) =$$

$$Q_e + \frac{R_1}{\tau_2} - \frac{S_1}{k} \left(\frac{\tau_1 - \tau_2}{\tau_1 \cdot \tau_2} \right) + \left(\frac{S_1}{k} - R_1 \right) \frac{\tau_1 - \tau_2}{\tau_1 \cdot \tau_2} e^{-\frac{t}{T}}$$

avec :

$$A \cdot \Delta [Pu]_e = Q_e$$

$$k \, [Pu]_{S_1} = \frac{1}{\tau_2}$$

$$k \, [Pu]_{S_2} = \frac{1}{\tau_2}$$

à $t = 0$ $\quad R = R_1 \quad \frac{dR}{dt} = Q_e$

à $t = \infty$ $\quad R = R_2 \quad \frac{dR}{dt} = 0.$

T, fonction des caractéristiques propres de la batterie et de la grandeur des perturbations est indéterminé, mais nous pouvons en donner une valeur par défaut :

$$T_{mini.} = \frac{R_2 - R_1}{\left(\frac{S_1 + S_2}{2} \right) \left([Pu]_{S_2} - [Pu]_{S_1} \right)}$$

III. 3. Problème du démarrage.

Au départ d'une campagne, ou après lavage de la batterie, la rétention en plutonium est nulle, et l'écart (R_o - R_1) est maximum.

Si le démarrage s'effectue avec la régulation, celle-ci opère une grande variation de débit solvant (- 25 pour cent maximum), le rapport ($\frac{S}{A}$) initial est très surcritique, et le solvant se charge très rapidement.

Nous supposons que les concentrations de sortie vérifient instantanément la loi de saturation et que la rétention en uranium ne varie pas, afin de déterminer le terme principal du régime transitoire en plutonium.

D'où l'équation différentielle régissant la rétention :

$$R + \left(\frac{\theta_o}{a K \theta k}\right) \frac{dR}{dt} = R_o - \frac{S_o}{k} + ([Pu]_e + a [U]_e) \frac{\theta_o A_o}{a K \theta k}$$

en posant $\tau = \frac{\theta_o}{a K \theta k}$ et $R = R_1$ à $t = 0$, la solution s'écrit :

$$R_{(+)} = R_1 e^{-\frac{t}{\tau}} + [R_o - \frac{S_o}{k} + \tau A_o ([Pu]_e + a [U]_e) (1 - e^{-\frac{t}{\tau}})$$

avec :

$$\frac{S_o}{k} - \tau A ([Pu]_e + a [U]_e) < R_o - R_1 < \frac{S_o}{k} - \tau A a [U]_e$$

condition de saturation du solvant	condition d'extraction totale de l'uranium.

L'équation différentielle trouvée est linéaire, du premier ordre.

En toute rigueur, il faudrait introduire un retard de propagation du plutonium de la section de lavage et de l'étage d'introduction vers l'extraction principale, et le système pourrait être représenté plus fidèlement par un système du second ordre.

D'autre part, la valeur d'équilibre finale, calculée suivant les hypothèses précédentes, est légèrement différente de celle calculée suivant la loi d'équilibre, en boucle fermée, en régime non saturé ; ceci s'explique par l'application de la loi de saturation durant tout le régime transitoire, alors qu'elle n'est plus vérifiée en fin de transitoire, pour un rapport de débit sous critique, et une rétention inférieure à R_C.

Quoique conscient de ces difficultés, liées à la mauvaise connaissance fondamentale des lois d'équilibre en plutonium, nous pensons que ces conditions aux limites ont des effets du second ordre sur la détermination du terme principal, et nous trouvons qu'en régime saturé et en boucle fermée, le système est sensiblement linéaire.

L'équation précédente permet de calculer le temps de montée le plus rapide, par paliers successifs, à la rétention d'équilibre de consigne souhaitée, pour le gain de boucle choisi.

Après application numérique, nous trouvons :

$$0,17\, R_C < R_o - R_1 < 0,15\, R_C$$

ce qui signifie que la rétention de consigne 0,85 R_C peut être atteinte en affichant cinq paliers successifs d'écart 0,17 R_C. Pour des conditions moyennes d'entrée et le débit maximum 2 A_o, le temps de montée à la rétention 0,85 R_C est de 20 h.

III. 4. Description de l'équipement.

La chaîne de régulation peut se décomposer en quatre parties : un ensemble de mesure de la rétention par comptage neutron, à l'aide de compteurs au trifluorure de bore placés dans les doigts de gant adjacents aux décanteurs, un ensemble électronique de traitement des impulsions provenant de ces compteurs, un ensemble électronique d'asservissement de vitesse et un système mécanique de variation de débit solvant [15], fig. III.1 .

Six compteurs sont placés dans les doigts de gant des étages 3 à 8. Afin d'être peu sensibles aux parasites usine, ils sont montés à l'intérieur d'un fourreau métallique servant de blindage, suivant la technique triaxiale.

Chaque compteur, alimenté sous une tension de 1 250 V, est suivi d'un préamplificateur sensible à la charge, d'un amplificateur, d'un discriminateur et d'un circuit de mise en forme, qui délivre des impulsions rectangulaires de + 10 V et 2 µs de large.

Le seuil de discrimination est placé suffisamment haut pour éliminer les impulsions provenant du bruit de fond et des empilements gamma.

Les impulsions provenant de ces six compteurs sont aiguillées sur une seule voie à l'aide d'un circuit mélangeur transistorisé.

Ce circuit est suivi d'un ictomètre à tube électromètre, de constante de temps 500 s., qui délivre une tension continue proportionnelle à la somme des taux de comptage, soit à la rétention en plutonium dans les étages 3 à 8.

La précision de la chaîne de régulation dépend pour beaucoup de la stabilité de cet ictomètre, dont l'étude et la réalisation ont été particulièrement soignées.

Le signal issu de l'ictomètre est comparé à une tension de consigne affichée par l'opérateur, et l'écart commande, après amplification, un moteur diphasé d'asservissement de vitesse, avec contre réaction tachymétrique.

C'est la vitesse de ce moteur, proportionnelle à l'écart qui existe entre la rétention de consigne et la rétention observée, qui détermine la correction du débit solvant .

En boucle ouverte, les débits solvant et aqueux sont réglés par des roues doseuses à godets, accouplées à un moteur principal, suivi d'un réducteur et d'un variateur de vitesse.

Le rapport des débits est réglé avec une précision de 1/1 000 en jouant sur les volumes des godets à l'aide de vis micrométriques.

Ce système, très précis, est conservé dans la régulation, car le désaccouplement total des roues aqueuses et solvant aurait pu introduire des erreurs importantes.

Un groupe réducteur et différentiel, commandé par le moteur asservi à l'écart de rétention, est intercalé entre les roues aqueuses et solvant.

Lorsque la rétention observée est égale à la rétention de consigne, ce moteur est à l'arrêt, et le mouvement des roues aqueuses, transmis aux roues solvant dans le rapport 1, détermine le rapport des débits nominaux $(\frac{S}{A})_o$.

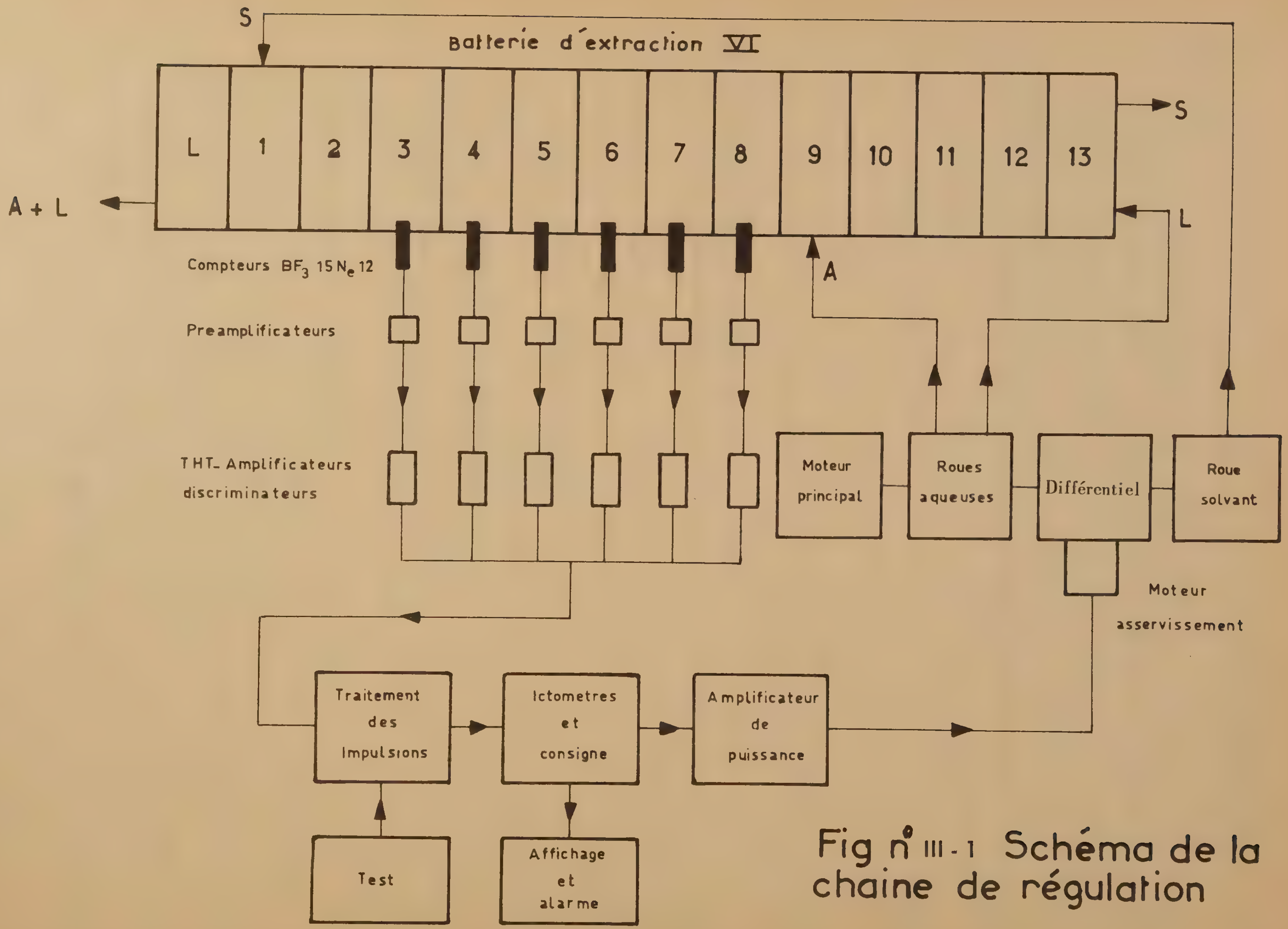


Fig n° III-1 Schéma de la chaine de régulation

Dans le cas contraire, le moteur tourne à une vitesse proportionnelle à l'écart, dans un sens fonction du signe de l'écart, et le débit solvant varie de $\pm$ 25 pour cent par rapport au débit nominal, pour toute la gamme de vitesse du moteur.

Ce dispositif possède un seuil très faible et permet une correction précise du débit solvant. En cas de panne de la chaîne de régulation, la reprise en marche manuelle est très facile.

Le gain de la chaîne de régulation peut être réglé à l'aide d'un potentiomètre situé avant l'amplificateur de puissance de l'asservissement de vitesse, ou en sélectionnant un des trois rapports de réduction du réducteur de vitesse.

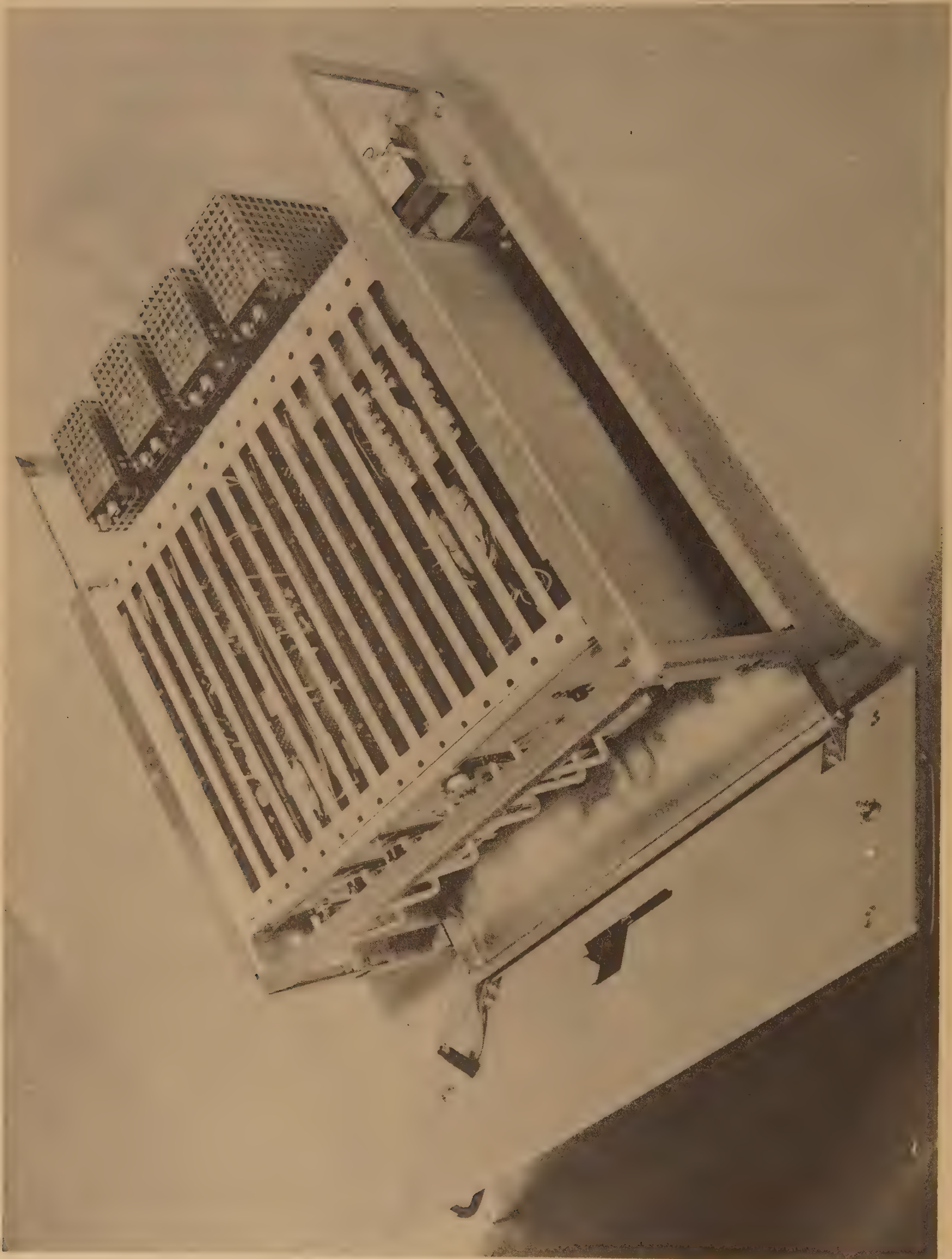
Des circuits annexes de test et d'étalonnage permettent de vérifier les caractéristiques de la chaîne, qui comporte une commande manuelle et une commande automatique.

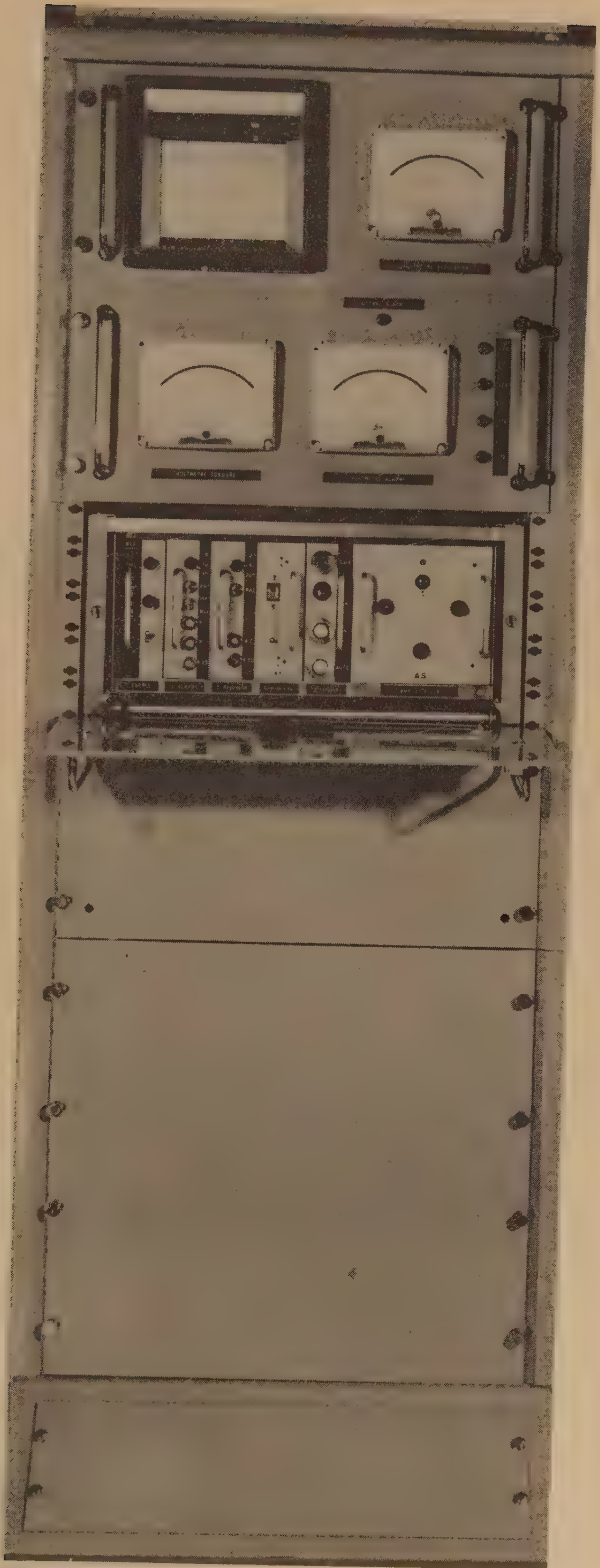
Un second ictomètre, de même constante de temps, délivre un signal proportionnel au taux de comptage du compteur n° 3, mis en alarme, afin de prévenir toute perte excessive de plutonium dans le raffinat. Cette alarme baisse automatiquement le point de consigne en cas de dépassement du seuil.

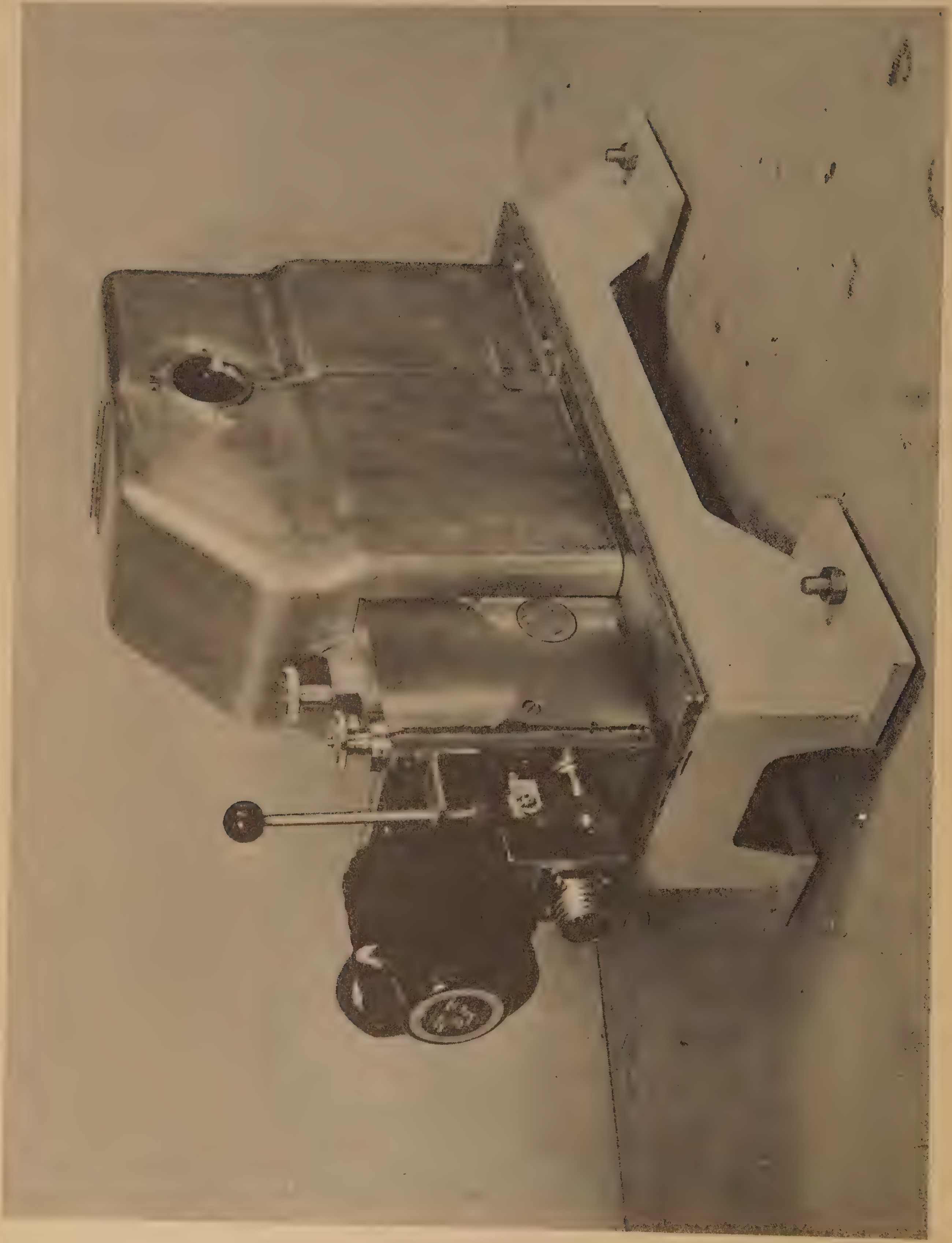
La valeur de consigne, la rétention observée, le signal mis en alarme, et la correction de débit solvant, sont affichés sur voltmètre et enregistrés en continu.

Le seuil d'alarme et le point de consigne sont corrigés par l'opérateur en fonction du pourcentage en ^{240}Pu.

Nous donnons trois vues qui représentent l'ensemble électronique de traitement des impulsions et de commande du moteur d'asservissement, ce même ensemble placé dans une baie, avec les divers enregistreurs, et le dispositif mécanique de commande des roues doseuses.







CHAPITRE IV

COMPARAISON DES RESULTATS OBTENUS AVANT ET APRES REGULATION .

L'exploitation continue de la batterie d'extraction durant deux ans permet de tirer les premiers enseignements de cette expérience.

Le fonctionnement de la batterie régulée est stable, ce qui permet d'augmenter la précision en doublant le gain prévu, ainsi que d'afficher une valeur de consigne proche de la rétention critique.

IV.1. Comparaison des valeurs d'équilibre observées aux valeurs calculées.

Nous relatons les résultats concernant 20 extractions consécutives, ce qui représente environ 600 heures de fonctionnement (fig. IV.1. et tableau IV.1.).

$$\left(\frac{S}{A}\right)_o = 1,64 \qquad \left(\frac{L}{S}\right)_o = 0,27$$

Ext. 1 à 13 $\frac{k}{A} = 4,6 \, . \, 10^{-3}/g$

Ext. 14 à 20 $\frac{k}{A} = 4,3 \, . \, 10^{-3}/g.$

Retention d'équilibre

$R_{cal} = f\ (R_{observé})$

K = 59

a = 0,52

R_c = 650

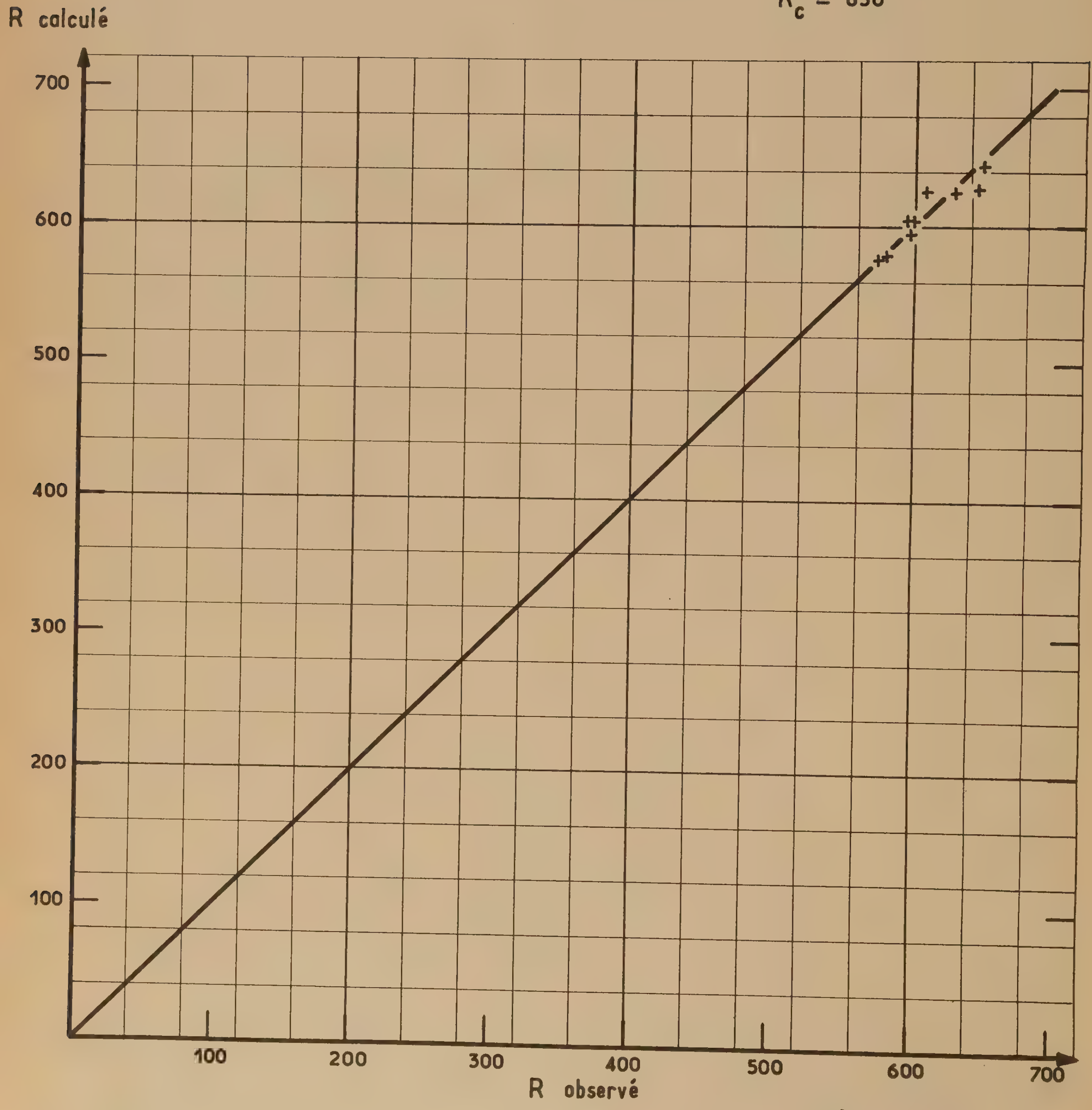


Fig. n°IV 1

TABLEAU IV.1.

COMPARAISON DES VALEURS D'EQUILIBRE OBSERVEES ET CALCULEES.

N° ext.	$(U)_e$ g/l	$(Pu)_e$ g/l	θ %	R_o consigne	R observé	R calculé
2	84,05	8,28	22,0	600	580	580
7	79,80	10,86	22,3	650	606	625
8	78,30	11,87	22,4	650	628	625
10	79,70	11,59	22,5	650	644	628
13	80,40	11,29	22,6	610	574	579
16	81,64	10,94	23,0	630	600	605
17	78,86	12,09	23,0	630	598	601
19	80,33	10,99	23,2	630	595	596
20	80,33	10,99	20,2	630	645	645

Compte tenu des imprécisions d'analyse et des erreurs sur la détermination des coefficients expérimentaux, nous observons que la corrélation entre les valeurs d'équilibre observées et calculées est bonne.

Dans le tableau IV.2. nous indiquons l'état de charge de l'extrait et la charge critique correspondante.

TABLEAU IV.2.

COMPARAISON DE L'ETAT DE CHARGE DE L'EXTRAIT PAR RAPPORT A LA CHARGE CRITIQUE.

N° Extract.	θ	$(U)_s$	$(Pu)_s$	Charge observée	Charge critique
				$(U)_s + \frac{(Pu)_s}{a}$	$\frac{K\theta}{20}$
	%	g/l	g/l	g/l	g/l
2	22,00	50,34	5,81	61,55	65,0
3	22,05	46,50	7,19	60,30	65,0
5	22,15	51,40	6,14	63,20	65,5

La charge de l'extrait est un peu inférieure à la charge critique, ce qui corrobore les résultats concernant les valeurs d'équilibre observées.

IV.2. Comparaison des temps de réponse observés aux temps de réponse calculés.

Nous avons opéré plusieurs démarrages par paliers successifs durant la période considérée.

La montée de la rétention à la valeur d'équilibre finale est très progressive et s'effectue dans le minimum de temps ; la variation de rétention en plutonium s'élève à 90 pour cent de la quantité entrante dans la batterie durant les périodes de démarrage, dont les durées sont en bon accord avec celles prévues par le calcul.

Les durées des évolutions enregistrées pour chaque palier sont du même ordre de grandeur que les durées calculées, cependant, les allures des réponses transitoires sont caractéristiques d'un système d'ordre supérieur à un, ainsi qu'il était prévisible, compte tenue des temps de propagation du plutonium dans la section de lavage et dans l'étage d'alimentation, ainsi que de la constante de temps de l'appareillage de mesure (500 s).

Il semble que le système pourrait être représenté avec une bonne approximation par une constante de temps équivalente au temps de renouvellement des volumes morts, et une constante de temps de mise en équilibre.

Nous prenons comme temps de réponse la durée qui s'écoule entre les valeurs 10 pour cent et 90 pour cent de l'échelon, soit $2,2\,\tau$, pour le terme principal calculé.

Nous indiquons quelques résultats dans le tableau IV.3.

TABLEAU IV.3.

VALEURS DES CONSTANTES DE TEMPS DE DEMARRAGE.

N° Ext.	R_1 initial	R_o consigne	ΔR	Temps de réponse calculés Heure	Temps de réponse observés Heure
1	440	500	60	2,85	1,80
	500	560	60	"	1,90
	560	600	40	"	1,60
14	10	90	80	2,10	4
	65	150	85	"	3
	125	210	85	"	2,4
	185	270	85	"	2,1
	270	330	60	"	2,0
15	330	390	60	2,10	2,4
	390	450	60	"	2
	450	510	60	"	1,8
	510	570	60	"	4,2
	570	630	60	"	5

A l'examen du tableau :

Lorsque le point de consigne correspond à une charge moyenne du solvant, les valeurs calculées des temps de réponse sont assez proches des valeurs observées (fig. IV.2).

Lorsque le point de consigne correspond à une charge faible du solvant, la valeur observée est supérieure à la valeur calculée, ce qui est conforme à la théorie, puisque le calcul de la constante de temps suppose que le solvant est chargé, ce qui n'est pas le cas.

Lorsque le point de consigne est proche de la rétention critique, nous observons également un allongement du temps de réponse par dépassement de la valeur de consigne (fig. IV.3.), dû à la tendance d'engorgement rapide, et de reflux important près de la rétention critique.

En fonctionnement normal, durant cette campagne de traitement, il n'y a pas eu d'écarts importants des conditions d'entrée pour deux extractions successives, et il n'est pas possible de comparer les réponses transitoires observées aux réponses transitoires calculées.

Réponses transitoires entre deux échelons successifs

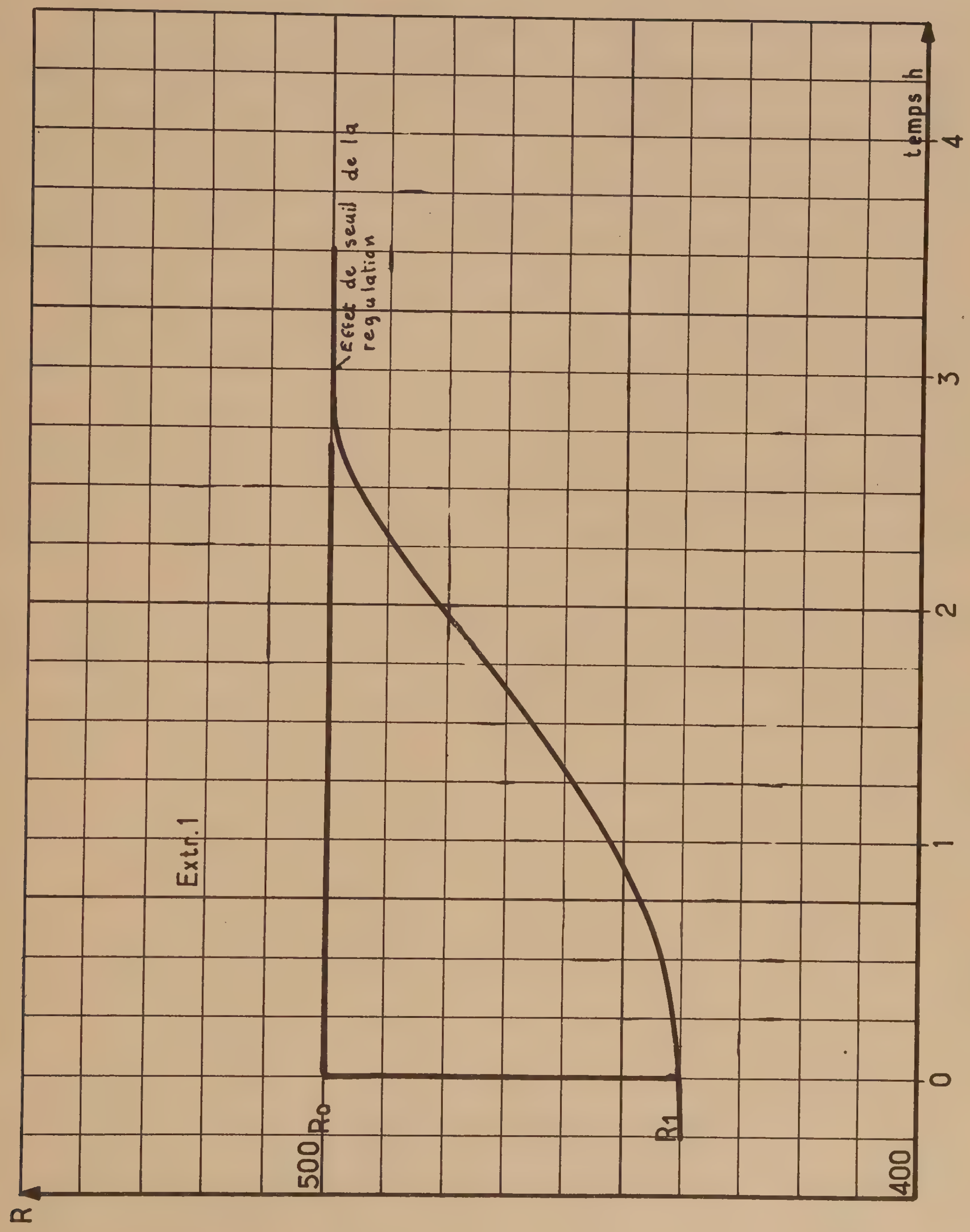


Fig. n° IV .2.

Réponses transitoires entre deux échelons successifs

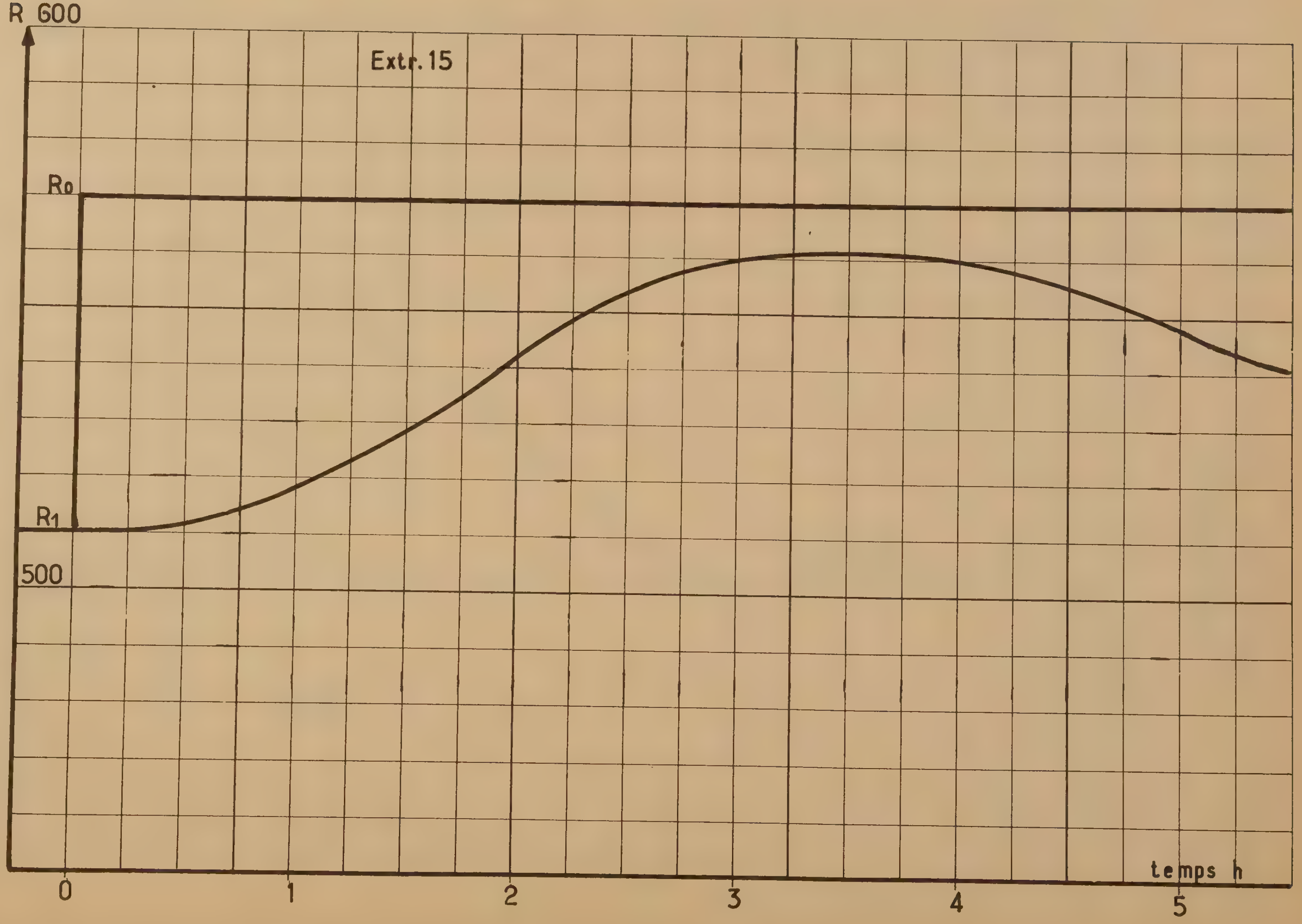


Fig. n° IV -3.

IV.3. Caractéristiques de l'extrait et du raffinat avant et après régulation.

Résultats obtenus avant régulation.

Nous avons choisi comme référence de comparaison des extractions un peu antérieures à celles du démarrage de la régulation.

La figure IV.4. représente l'évolution de la rétention en plutonium dans les étages 3 à 8, des fuites en plutonium dans le raffinat, du facteur de décontamination en produits de fission et de l'activité gamma de l'extrait.

Nous observons une instabilité marquée de la rétention en plutonium, elle nécessite des interventions fréquentes de l'exploitant, et parfois un fonctionnement avec solution d'alimentation inactive pour stopper l'engorgement.

Il s'ensuit une grande instabilité des fuites en plutonium dans le raffinat, du facteur de décontamination, et de l'activité gamma résiduelle accompagnant le plutonium dans l'extrait.

La valeur moyenne des fuites en plutonium dans le raffinat voisine 20 mg/l ; 48 pour cent des extractions comportent des fuites inférieures à 10 mg/l, la valeur moyenne de l'activité gamma de l'extrait est d'environ 0,15 mc/g de plutonium avec un maximum de 1,2 mc/g et 31 pour cent des extractions présentent une activité gamma inférieure à 0,05 mc/g de plutonium.

La valeur moyenne du facteur de décontamination du plutonium en produits de fission est d'environ 1 300, 40 pour cent des extractions possèdent un facteur de décontamination supérieur à 1 000.

Ces valeurs ainsi que celles correspondant aux résultats obtenus avec régulation sont portées sur le tableau n° IV.4.

Fonctionnement sans régulation

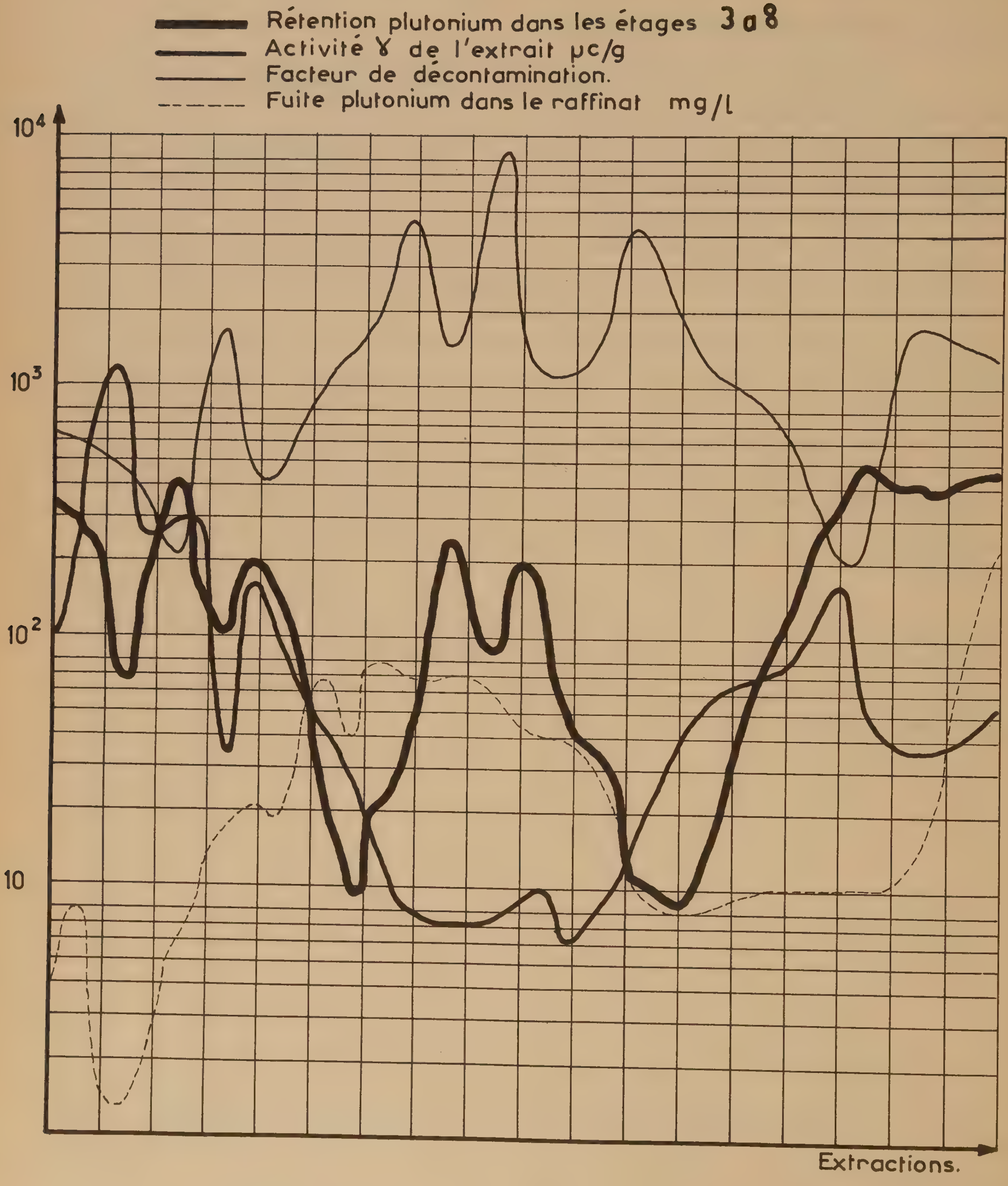


Fig. n° IV -4

TABLEAU IV. 4.

COMPARAISON DES RESULTATS D'EXPLOITATION SANS ET AVEC REGULATION.

		sans régulation	avec régulation
Fuite en plutonium dans le raffinat	moyenne	23 mg/l	6 mg/l
	maximum	200 mg/l	26 mg/l
	< 10 mg/l	48 %	80 %
Activité gamma de l'extrait	moyenne	0,15 mc/g	0,025 mc/g
	maximum	1,2 mc/g	0,050 mc/g
	< 0,05 mc/g	31 %	100 %
Facteur de décontamination du plutonium en produits de fission.	moyen	1 300	4 100
	maximum	9 000	12 000
	% FD > 1 000	41 %	100 %
	% FD > 3 000	12 %	70 %

NOTA : Les activités gamma des solutions soumises à l'extraction étaient comprises entre 130 et 70 mc/g

Résultats obtenus avec régulation.

L'échantillon choisi concerne 13 extractions à partir de la mise en service de la régulation.

La figure IV. 5. représente l'évolution de la rétention en plutonium dans les étages 3 à 8, des fuites en plutonium dans le raffinat, du facteur de décontamination en produits de fission et de l'activité gamma de l'extrait.

En fonctionnement normal, la rétention est stable et suit bien les variations du point de consigne, voisin de 0, 95 R_c.

Il en résulte un bon facteur de décontamination et des fuites réduites dans le raffinat, la valeur moyenne de ces dernières est d'environ 6 mg/l avec un maximum de 26 mg/l ; 80 pour cent des extractions comportent des fuites inférieures à 10 mg/l.

La valeur moyenne de l'activité gamma de l'extrait est d'environ 0, 025 mc/g avec un maximum de 0, 050 mc/g ; en fonctionnement normal 100 pour cent des extractions présentent une activité gamma de l'extrait inférieure à 0, 05 mc/g de plutonium.

Fonctionnement avec régulation

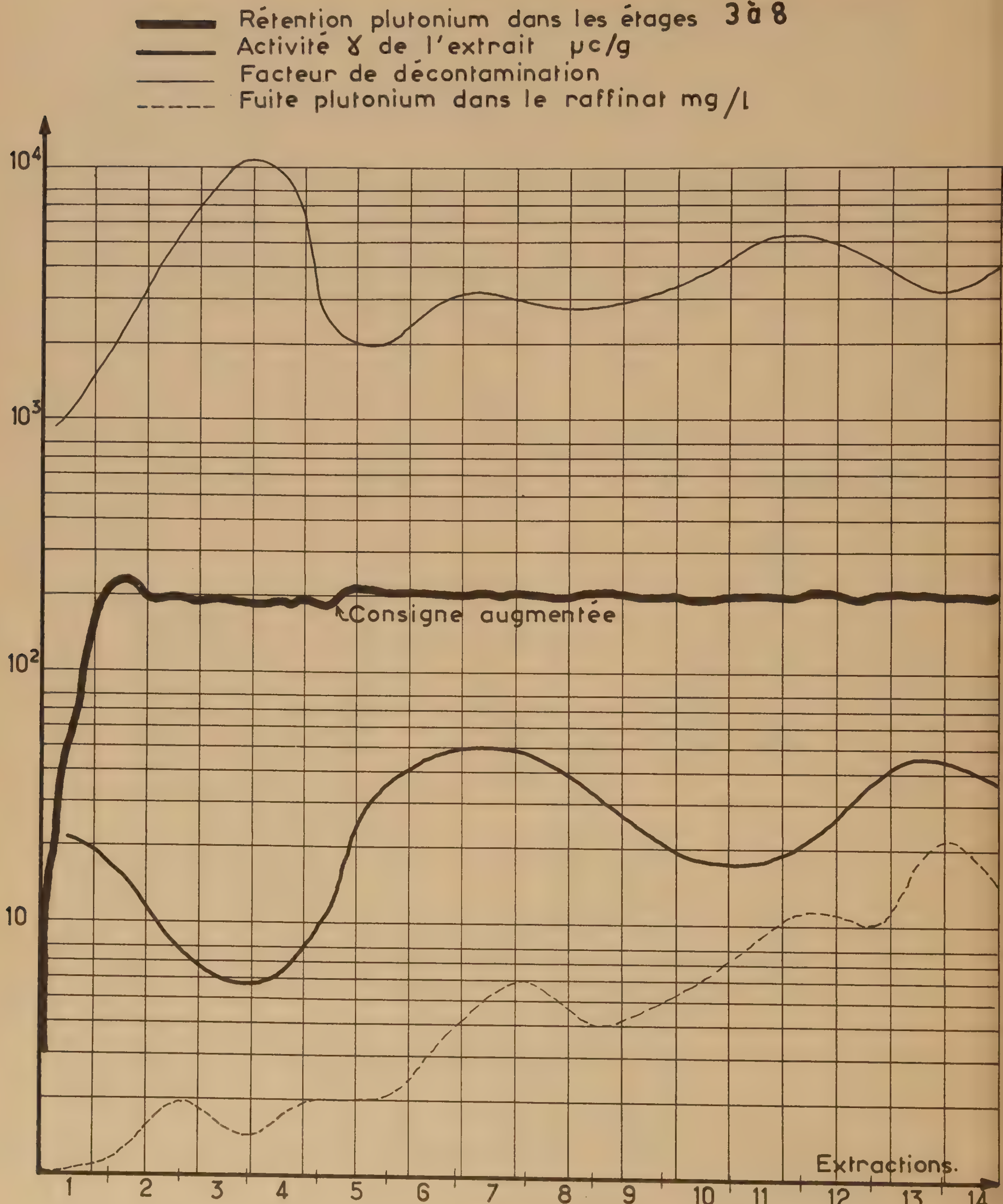


Fig. n° IV -5.

La valeur moyenne du facteur de décontamination du plutonium en produits de fission est d'environ 4 100 avec un maximum de 12 000 ; 100 pour cent des extractions possèdent un facteur de décontamination supérieur à 1 000 et 70 pour cent un facteur de décontamination supérieure à 3 000.

Les fuites relativement élevées en fin d'échantillon, sont constituées essentiellement par une quantité inextractible de plutonium à la valence III. D'autre part, en cas de perturbation importante, certaines augmentations temporaires des fuites peuvent être enregistrées si la valeur de consigne est proche de la valeur critique (0,95 R_c pour cet échantillon).

La figure IV.6. indique l'activité gamma résiduelle de l'extrait depuis le début du fonctionnement de l'extraction VI.

Nous observons une baisse très nette de l'activité moyenne après mise en service de la régulation. Les faibles valeurs observées en début de fonctionnement de la batterie correspondent à des solutions de plutonium nettement moins actives, et les résultats ne sont pas comparables.

La stabilité de la saturation du solvant,liée à la réduction des phénomènes transitoires de la rétention en plutonium, détermine une dispersion beaucoup plus faible des activités résiduelles, et assure une bonne homogénéité des caractéristiques des lots de plutonium.

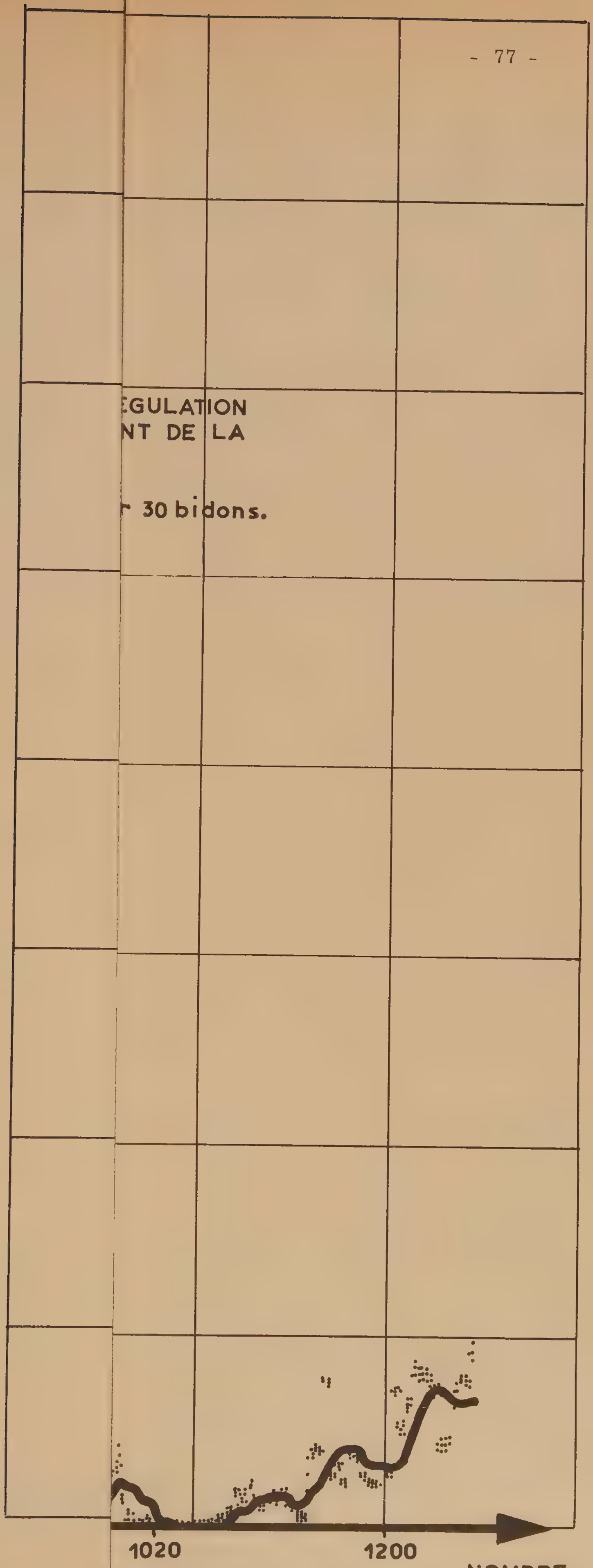
La figure IV.7. indique les fuites en plutonium dans le raffinat.

De même que pour l'activité gamma résiduelle de l'extrait, nous observons que la valeur moyenne et la dispersion des fuites en plutonium sont beaucoup plus faibles après régulation.

L'augmentation temporaire des fuites après régulation, a été causée par une opération de recyclage de solutions récupérées, avec fonctionnement en manuel.

EGULATION
NT DE LA

r 30 bidons.



ig n° IV 6

IV.4. Fiabilité du matériel.

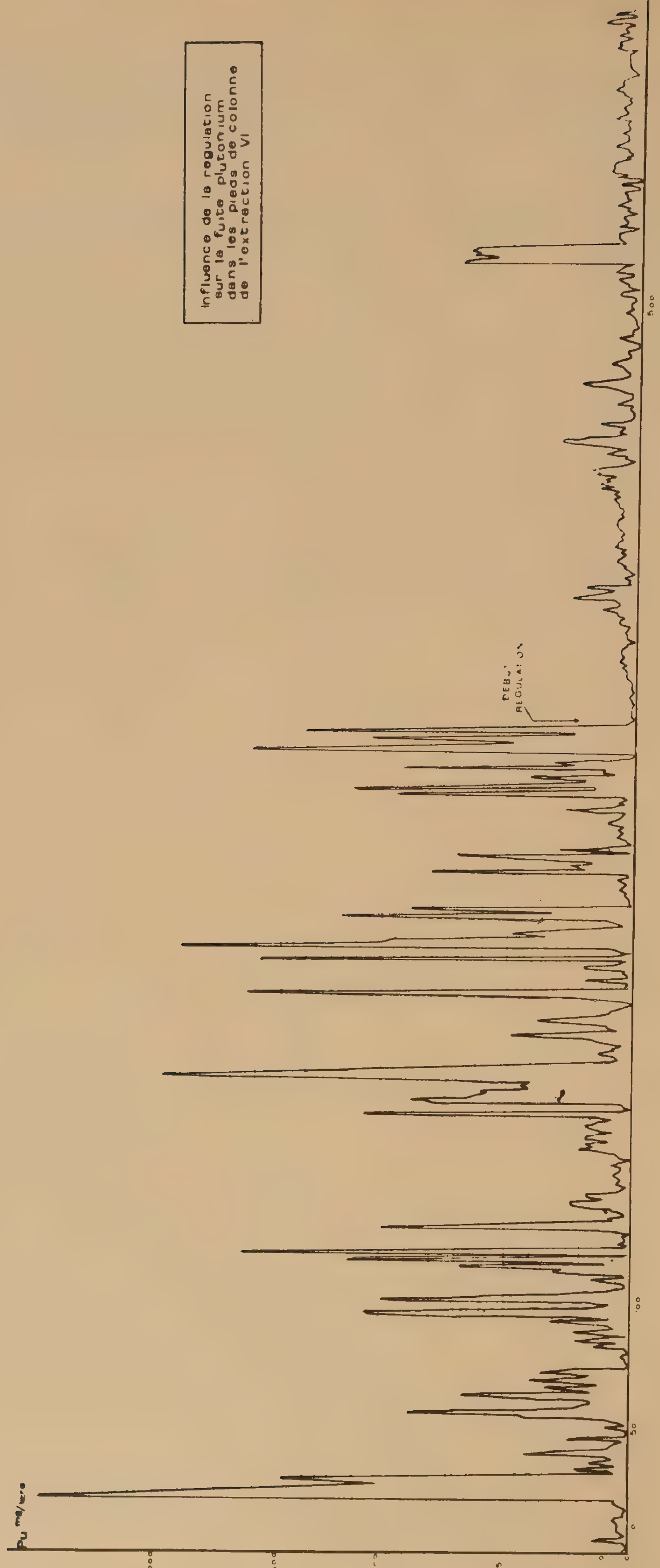
Le fonctionnement continu de l'installation depuis deux ans nous permet de dire que les résultats obtenus sont satisfaisants, tant du point de vue mécanique, qu'électronique.

Les compteurs au trifluorure de bore semblent stables, et une vérification de leurs caractéristiques après un an de fonctionnement n'a pas permis de mettre en évidence une dérive importante.

Des réglages de zéro et de gammes des ictomètres à grande constante de temps sont effectués périodiquement : une dérive de 2 pour cent a été observée en six mois.

Nous observons parfois une augmentation du taux de comptage due à des parasites usine, durant des temps très brefs, mais ces perturbations n'ont pas eu de conséquences sur le fonctionnement de la batterie régulée.

L'indication significative de l'étage 3, mis en alarme, a permis d'utiliser avec succès le dispositif automatique de changement de point de consigne en cas de dépassement du seuil, ce qui évite tout engorgement rapide et des fuites importantes de plutonium dans le raffinat.


Influence de la regulation
sur la fuite plutonium
dans les pieds de colonne
de l'extraction VI
DEBUT REGULATION
Pu mg/litre
50
100
500

CONCLUSION GENERALE.

L'ensemble des résultats obtenus est satisfaisant, tant du point de vue théorique qu'expérimental.

Cependant, certaines faiblesses du modèle mathématique approché mériteraient d'être corrigées par une étude plus fondamentale, en considérant les phénomènes élémentaires et la structure interne de la batterie.

Sur cette voie nous pouvons citer les travaux de TAYLOR [16] pour les colonnes pulsées, ainsi que ceux de WILDE [17] et de WILBURN [18].

Sur le plan pratique, l'automatisation s'est accompagnée d'une diminution des fuites en plutonium dans le raffinat, d'une augmentation du facteur de décontamination, et d'une diminution de l'activité gamma du plutonium de l'extrait.

Cette faible activité gamma permet d'éliminer le traitement discontinu sur résines échangeuses d'ions, et d'effectuer directement la précipitation du plutonium à l'atelier d'oxalate continu.

D'autre part, le fonctionnement sûr et stable de la batterie nécessite un nombre d'analyses de fonctionnement réduit, et diminue la charge des opérateurs.

Au vu de ces résultats, il est envisagé d'étendre ce mode de contrôle à des installations voisines des usines de la Hague et de Marcoule.

C'est pourquoi, nous pensons pouvoir dire que cette expérience, associée à un certain nombre d'autres essais, constitue un pas en avant de plus vers un fonctionnement automatique des usines de traitement de combustibles irradiés.

ANNEXE I - [4] -

EFFET DE LA SATURATION EN URANIUM DU SOLVANT SUR LE FACTEUR DE DECONTAMINATION EN PRODUITS DE FISSION.

	Facteur de décontamination (F.D.)	
	Saturation en uranium 45 %	Saturation en uranium 65 %
Emetteurs β	1 340	6 500
Emetteurs γ	290	2 000
Ruthénium	79	338
Zirconium	227	4 770
Niobium	341	5 270

Valeurs obtenues pour deux cycles d'extration avec batteries miniatures de mélangeurs-décanteurs.

NOTA -

- La saturation du solvant est égale au nombre de radicaux T.B.P. liés à l'uranium et du nombre de radicaux T.B.P. local.

- Le facteur de décontamination (F.D.) est le rapport des quantités de produits de fission par gramme de plutonium, du raffinat et de l'extrait.

ANNEXE II

CALCUL DU SPECTRE D'ENERGIE ELEMENTAIRE DES NEUTRONS PRIMAIRES POUR DES PARTICULES α MONOENERGETIQUES.

Calcul de l'énergie du neutron émis.

Nous écrivons les lois de la mécanique dans le système du centre de masse des particules.

Dans ce système, l'énergie avant et après le choc se conserve, et la quantité de mouvement est nulle.

Dans le système du laboratoire, la particule α a une vitesse V_α avant le choc et le noyau cible est fixe. Le centre de masse G se déplace à la vitesse :

$$\frac{M_\alpha}{M_\alpha + M_C} \cdot V_\alpha \qquad \text{(voir figure jointe)}$$

Dans le système du centre de masse, la particule α se déplace à la vitesse:

$$V'_\alpha = \frac{M_C}{M_C + M_\alpha} \cdot V_\alpha$$

, et le noyau cible a la vitesse:

$$V'_c = - \frac{M_\alpha}{M_C + M_\alpha} \cdot V_\alpha$$

Dans ce même système, après le choc, la quantité de mouvement est nulle, et le neutron et le noyau émis ont des vitesses contraires.

Si V'_n et V'_F sont les vitesses de ces particules, nous avons :

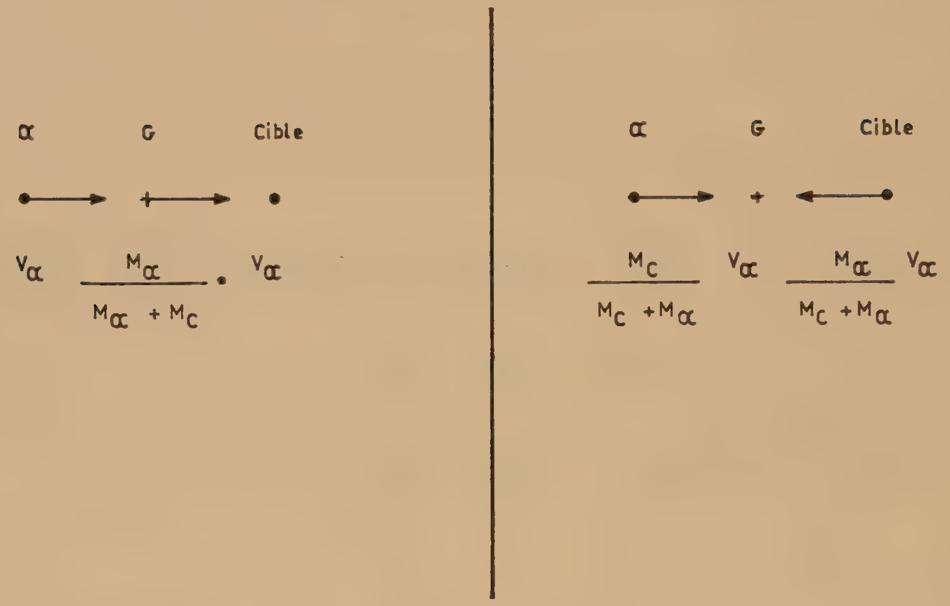
$$M_n \cdot V'_n = M_F \cdot V'_F \qquad \text{(loi de conservation de la quantité de mouvement)}$$

Soit :

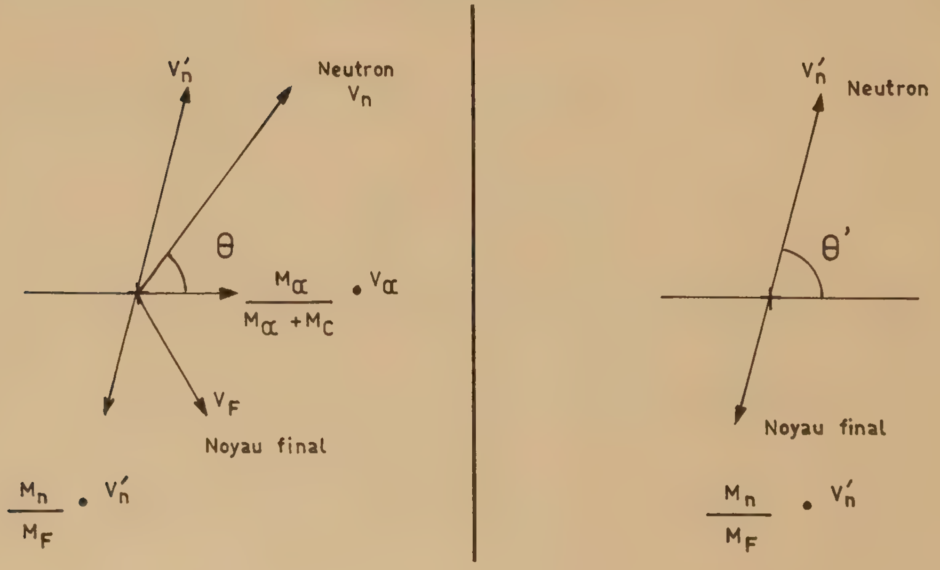
Cinetique du choc

Système du laboratoire | **Système du centre de masse**

Avant le choc



Aprés le choc
Application de la loi de conservation de la quantité de mouvement



$$V'_F = \frac{M_n}{M_F} \cdot V'_n$$

Appliquons maintenant la loi de conservation de l'énergie, avant et après le choc :

$$E'_\alpha + E'_C + Q = E'_n + E'_F$$

$$E'_\alpha = \frac{1}{2} M_\alpha V'^2_\alpha = E_\alpha \left(\frac{M_C}{M_C + M_\alpha} \right)^2$$

$$E'_C = \frac{1}{2} M_C V'^2_C = E'_\alpha \cdot \frac{M_\alpha}{M_C}$$

Q est la quantité d'énergie libérée dans le choc par variation de masse (il n'y a pas de gamma de désexcitation).

$$E'_n = \frac{1}{2} M_n \cdot V'^2_n$$

$$E'_F = \frac{1}{2} M_F V'^2_F = E'_n \cdot \frac{M_n}{M_F}$$

D'où :

$$E'_n = \frac{M_F}{M_F + M_n} \left[\left(\frac{M_C + M_\alpha}{M_C} \right) E'_\alpha + Q \right]$$

La vitesse du neutron émis dans le système du laboratoire est donnée par la relation vectorielle :

$$\vec{V}_n = \vec{V'}_n + \vec{V}_G$$

Si φ' est l'angle d'émission du neutron dans le système du centre de masse, nous pouvons écrire, d'après la relation précédente :

$$V^2_n = V'^2_n + V_G^2 + 2 V_G V'_n \cos \varphi'$$

D'où :

$$E_n = \frac{M_n}{2} (V'^2_n + V_G^2 + 2 V_G V'_n \cos \varphi')$$

et en définitive :

$$E_n = E'_n + \frac{M_n \cdot M_\alpha}{(M_C + M_\alpha)^2} \cdot E_\alpha \cdot \frac{2\sqrt{M_n \cdot M_\alpha}}{M_C + M_\alpha} \sqrt{E_\alpha \cdot E'_n} \cos \varphi'$$

REMARQUE :

Lorsque le noyau final est dans un état excité et qu'il y a émission d'un gamma, il faut tenir compte de l'énergie emportée par cette particule.

Lorsqu'il y a n modes de désexcitation, il faut effectuer séparément le calcul des spectres de neutron pour chacun de ces modes et pondérer ces spectres suivant la probabilité associée au mode de désexcitation considéré.

Calcul du spectre élémentaire.

SCHIFFER [7] a étudié expérimentalement les lois angulaires d'émission des neutrons pour les réactions (α , n) avec les isotopes considérés.

Nous reproduisons sur la figure suivante quelques distributions angulaires des neutrons issus de la réaction $^{13}C\ (\alpha, n)\ ^{16}O$, à diverses énergies de résonance.

Nous allons déterminer $P_{E_n}^{E_\alpha}$ pour deux distributions angulaires approchées .

- Première approximation.

$$\frac{dP}{d\varphi'} = A$$

En normalisant la loi, il vient $A = \frac{1}{\pi}$, et

$$P_{E_n}^{E_\alpha} = \frac{dP}{d\varphi'} \cdot \left| \frac{d\varphi'}{d E_n} \right| = \frac{1}{\pi} \cdot \left| \frac{d\varphi'}{d E_n} \right|$$

Nous savons que :

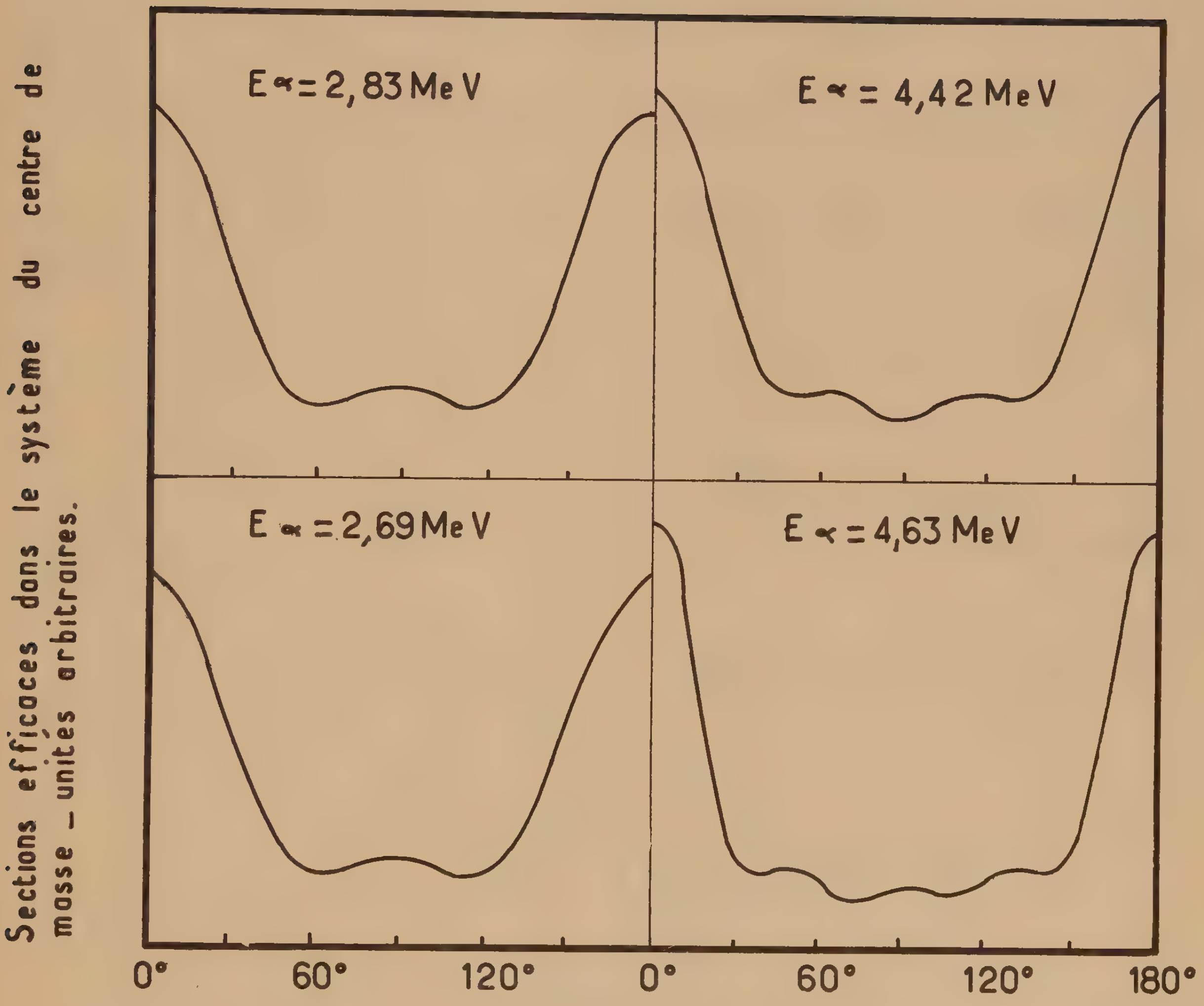
$$E_n = b + a \cos \varphi' \qquad \text{(a et b} > 0)$$

d'où :

$$\left| \frac{d\varphi'}{d E_n} \right| = \frac{1}{a \sin \varphi'}$$

et en définitive :

Annexe 2 _ réf 7



Distribution angulaire des neutrons issus de la réaction $C^{13}(\alpha, n)O^{16}$ à diverses énergies de résonance.

$$P_{E_n}^{E_\alpha} = \frac{1}{\pi \sqrt{a^2 - (E_n - b)^2}} \quad \text{pour } b - a < E_n < b + a$$

$$= 0 \text{ pour } \quad E_n < b - a \quad \text{et} \quad E_n > b + a$$

- Deuxième approximation.

$$\frac{dP}{d\varphi'} = A + B \cos 2\varphi'$$

avec, suivant les résultats expérimentaux :

$$\frac{A - B}{A + B} = 0,22$$

En normalisant la loi, il vient :

$$A = \frac{1}{\pi}$$

$$B = \frac{1}{1,565\ \pi}$$

D'où comme précédemment :

$$P_{E_n}^{E_\alpha} = \frac{1}{\pi \sqrt{a^2 - (E_n - b)^2}} + \frac{2 (E_n - b)^2 - a^2}{1,565\ \pi\ a^2 \sqrt{a^2 - (E_n - b)^2}}$$

$$\text{pour } b - a < E_n < b + a$$

$$= 0 \qquad \text{pour } E_n < b - a \text{ et } E_n > b + a$$

ANNEXE III

CALCUL DU SPECTRE D'ENERGIE DES NEUTRONS PRIMAIRES POUR DES SOURCES DE PARTICULES α MONOENERGETIQUES EN MILIEU EPAIS.

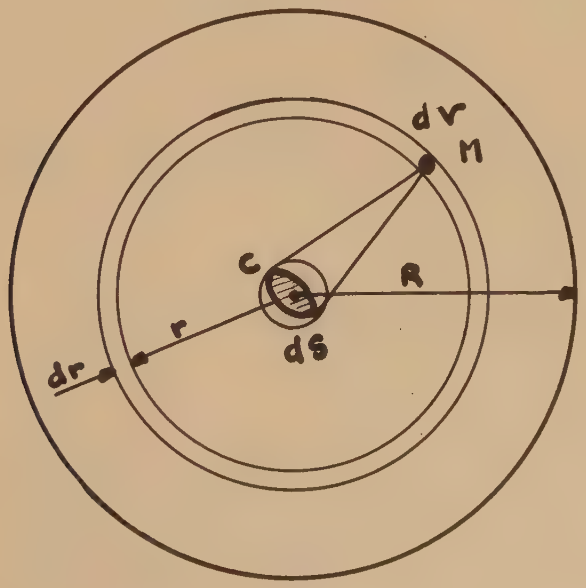
- Calcul du spectre d'énergie des particules α .

Les particules α issues de la désintégration des noyaux de plutonium sont monoénergétiques, mais elles perdent leur énergie d'une manière quasiment continue, par ionisation dans le milieu.

Dans ce cas, SPENCER et FANO [8] tiennent pour acquis le spectre d'énergie des particules chargées, mais nous allons en donner la démonstration.

Soit une sphère infiniment petite, centrée sur un point quelconque C du milieu, et soit dS sa section droite passant par C.

Si R est le libre parcours des particules dans ce milieu, seules celles qui sont émises par des sources situées à l'intérieur d'une sphère de rayon R et de centre C peuvent atteindre C.



Soit un point M situé à une distance r de C ($r < R$), et soit dV un petit volume centré sur M.

Si l'activité spécifique du milieu est I_o, le nombre de particules reçues par C en provenance de dV est :

$$dN = \frac{dS}{4 \pi r^2} I_o \, dV$$

Pour une épaisseur sphérique dr, à la distance r, le nombre de particules reçues par C est :

$$dN = I_o \, dS \, . \, dr$$

Nous trouvons que dN est indépendant de R.

Le flux de particules en C, est la limite de $\frac{dN}{dS}$ étendue à toute la sphère, de rayon R, soit :

$$\phi = I_o \int_0^R dr = I_o \, . \, R$$

Les particules émises dans l'épaisseur comprise entre r et r + dr ont une énergie comprise entre E et E + dE à leur arrivée en C.

Le pouvoir d'arrêt $\frac{dE}{dx}$ qui lie dE à dr est donné en fonction du milieu, de la nature et de l'énergie de la particule, par la formule de BETHE [9].

Nous définissons le spectre d'énergie des particules en C comme la fonction qui représente le nombre de particules dN comprises dans l'intervalle E et E + dE, à leur arrivée en C.

Soit, d'après ce qui précède :

$$\frac{dN}{|dE|} = \frac{I_o \, dS}{\left| \frac{dE}{dx} \right|}$$

Le spectre d'énergie est proportionnel à l'inverse du pouvoir d'arrêt du milieu pour les particules considérées.

- <u>Détermination des bornes d'intégration de l'intégrale donnant P_{E_n}</u>

Nous avons vu que :

$$P_{E_n} = \frac{1}{E_{\alpha \, max}^{-\frac{B}{2}}} \int_{\frac{B}{2}}^{E_{\alpha \, max}} P_{E_n}^{E_\alpha} \, . \, d E_\alpha$$

Le calcul des spectres élémentaires a montré qu'une particule α d'énergie E donne naissance à des neutrons situés dans une bande d'énergie comprise entre les bornes b + a et b - a, fonctions de E_α .

Inversement, comme $\frac{d\,(b+a)}{d\,E_\alpha}$ et $\frac{d\,(b-a)}{d\,E_\alpha}$ sont positives dans l'intervalle $[\frac{B}{2}, E_{\alpha\,max}]$, seules des particules α d'énergies situées dans une bande à définir, sont susceptibles de donner naissance à des neutrons d'énergie E_n.

Les bornes $E_{\alpha\,o}$ et $E_{\alpha\,1}$ qui limitent cette bande sont telles que l'énergie E_n vérifie les relations :

$E_n = b_o + a_o$ qui détermine $E_{\alpha\,o}$

$E_n = b_1 - a_1$ qui détermine $E_{\alpha\,1}$.

$E_{\alpha\,o}$ et α_1 déterminées, six cas sont à considérer pour le calcul de P_{E_n} :

a) $E_{\alpha\,o} < E_{\alpha\,1} < \frac{B}{2} < E_{\alpha\,max}$

$$P_{E_n} = 0$$

b) $E_{\alpha\,o} < \frac{B}{2} < E_{\alpha\,1} < E_{\alpha\,max}$

$$P_{E_n} = \frac{1}{E_{\alpha\,max} - \frac{B}{2}} \int_{\frac{B}{2}}^{E_{\alpha\,1}} P_{E_n}^{E_\alpha}\, d\,E_\alpha$$

c) $E_{\alpha\,o} < \frac{B}{2} < E_{\alpha\,max} < E_{\alpha\,1}$

$$P_{E_n} = \frac{1}{E_{\alpha\,max} - \frac{B}{2}} \int_{\frac{B}{2}}^{E_{\alpha\,max}} P_{E_n}^{E_\alpha}\, d\,E_\alpha$$

d) $\frac{B}{2} < E_{\alpha\,o} < E_{\alpha\,1} < E_{\alpha\,max}$

$$P_{E_n} = \frac{1}{E_{\alpha\,max} - \frac{B}{2}} \int_{E_{\alpha\,o}}^{E_{\alpha\,1}} P_{E_n}^{E_\alpha}\, d\,E_\alpha$$

e) $\frac{B}{2} < E_{\alpha\, o} < E_{\alpha\, max} < E_{\alpha\, 1}$

$$P_{E_n} = \frac{1}{E_{\alpha\, max} - \frac{B}{2}} \int_{E_{\alpha\, o}}^{E_{\alpha\, max}} P_{E_n}^{E_{\alpha\, max}} \, d\, E_{\alpha}$$

f) $E_{\alpha\, max} < E_{\alpha\, o} < E_{\alpha\, 1}$

$$P_{E_n} = 0.$$

- Applications numériques.

- Réaction $^{13}C\ (\alpha\ ,\ n)\ ^{16}O$.

Nous trouvons tous calculs faits :

$$E_n = 2,23 + 0,734\ E_\alpha + 0,235\ \sqrt{E_\alpha\ (2,23 + 0,72\ E_\alpha)}\ \cos\varphi'$$

$$a = 0,235\ \sqrt{E_\alpha\ (2,23 + 0,72\ E_\alpha)}$$

$$b = 2,23 + 0,734\ E_\alpha$$

$$E_{\alpha\ max} - \frac{B}{2} \simeq 3\ \text{MeV}$$

D'où, en posant $x = E_\alpha$:

$$P_{E_n} = \frac{1}{3} \cdot \int_{E_\alpha} \frac{d\ E_\alpha}{\pi \sqrt{-0,5\ E_\alpha^2 + (1,46\ E_n - 3,14)\ E_\alpha - (E_n - 2,23)^2}}$$

$$= 0,15 \left[\text{Arc sin} \frac{x + 3,14 - 1,46\ E_n}{\sqrt{(1,46\ E_n - 3,14)^2 - 2\ (E_n - 2,23)^2}} \right]_{E_\alpha}$$

Calcul des bornes d'intégration :

$$E_n = 2,23 + 0,734\ E_{\alpha_o} + 0,235\ \sqrt{E_{\alpha_o}\ (2,23 + 0,72\ E_{\alpha_o})}$$

$$E_n = 2,23 + 0,734\ E_{\alpha_1} - 0,235\ \sqrt{E_{\alpha_1}\ (2,23 + 0,72\ E_{\alpha_1})}$$

E_{α_1} et E_{α_o} sont les racines de l'équation unique :

$$0,5\ x^2 + (3,14 - 1,46\ E_n) + (E_n - 2,23)^2 = 0$$

Soit :

$$E_{\alpha_o} = 1,46\ E_n - 3,14 - \sqrt{\Delta}$$

$$E_{\alpha_1} = 1,46\ E_n - 3,14 + \sqrt{\Delta}$$

avec : $\Delta = (3,14 - 1,46\ E_n)^2 - 2\ (E_n - 2,23)^2$

Calcul de valeurs discrètes du spectre.

Energie des neutrons exprimée en MeV.

$P_{(3,\ 13)} = 0$

$P_{(3,\ 2)} = 0,0495$

$P_{(3,3)} = 0,126$

$P_{(3,5)} = 0,204$

$P_{(4)} = 0,321$

$P_{(5)} = 0,378$

$P_{(6)} = 0,194$

$P_{(7)} = 0,069$

$P_{(7,\ 3)} = 0$

- Réaction $^{18}O\ (\alpha\ ,\ n)\ ^{21}Ne$.

Nous trouvons, tous calculs faits :

$$E_n = 0,781\ E_\alpha + 0,21 + 0,182 \sqrt{E_\alpha\ (0,78\ E_\alpha + 0,21)}\ \cos\varphi'$$

$$a = 0,182 \sqrt{E_\alpha\ (0,78\ E_\alpha + 0,21)}$$

$$b = 0,781\ E_\alpha + 0,21$$

$$\frac{B}{2} - E_{\alpha\ max} = 2,3\ \text{MeV}.$$

D'où, en posant $x = E_\alpha$:

$$P_{E_n} = \frac{1}{2,3} \int_{E_\alpha} \frac{d\ E_\alpha}{\pi \sqrt{-\ 0,584\ E^2_\alpha + (1,56\ E_n - 0,32)\quad E_\alpha - (E_n - 0,21)^2}}$$

$$= 0,181\ \left[\text{Arc sin} \frac{1,\ 17\ x + 0,32 - 1,56\ E_n}{(0,32 - 1,56\ E_n)^2 - 2,34\ (E_n - 0,21)^2} \right]$$

Calcul des bornes d'intégration ;

$$E_n = 0,781\ E_{\alpha\ o} + 0,21 + 0,182 \sqrt{E_{\alpha\ o}\ (0,78\ E_{\alpha\ o} + 0,21)}$$

$$E_n = 0,781\ E_{\alpha_1} + 0,21 + 0,182 \sqrt{E_{\alpha_1} (0,78\ E_{\alpha_1} + 0,21)}$$

E_{α_1} et E_{α_o} sont racines de l'équation unique :

$$0,584\ x^2 + x\ (0,32 - 1,56\ E_n) + (E_n - 0,21)^2 = 0$$

Soit :

$$E_{\alpha_o} = 0,856\ [\ 1,56\ E_n - 0,32 - \sqrt{\Delta}\ ]$$

$$E_{\alpha_1} = 0,856\ [\ 1,56\ E_n - 0,32 + \sqrt{\Delta}\ ]$$

avec $\Delta = (0,32 - 1,56\ E_n)^2 - 2,34\ (E_n - 0,21)^2$

Calcul des valeurs discrètes du spectre.

Energie des neutrons exprimée en MeV

$P_{(1,95)} = 0$

$P_{(2)} = 0,088$

$P_{(2,2)} = 0,226$

$P_{(2,4)} = 0,310$

$P_{(2,6)} = 0,393$

$P_{(3)} = 0,569$

$P_{(3,5)} = 0,457$

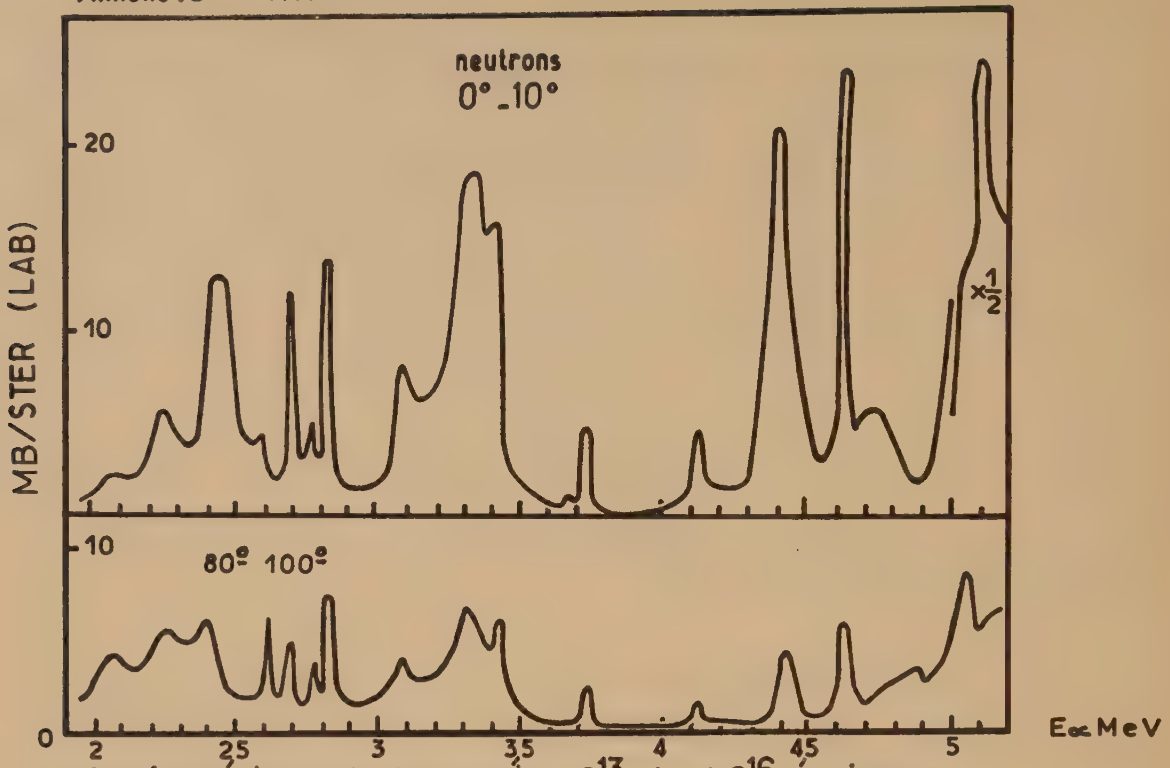
$P_{(4)} = 0,297$

$P_{(4,5)} = 0,179$

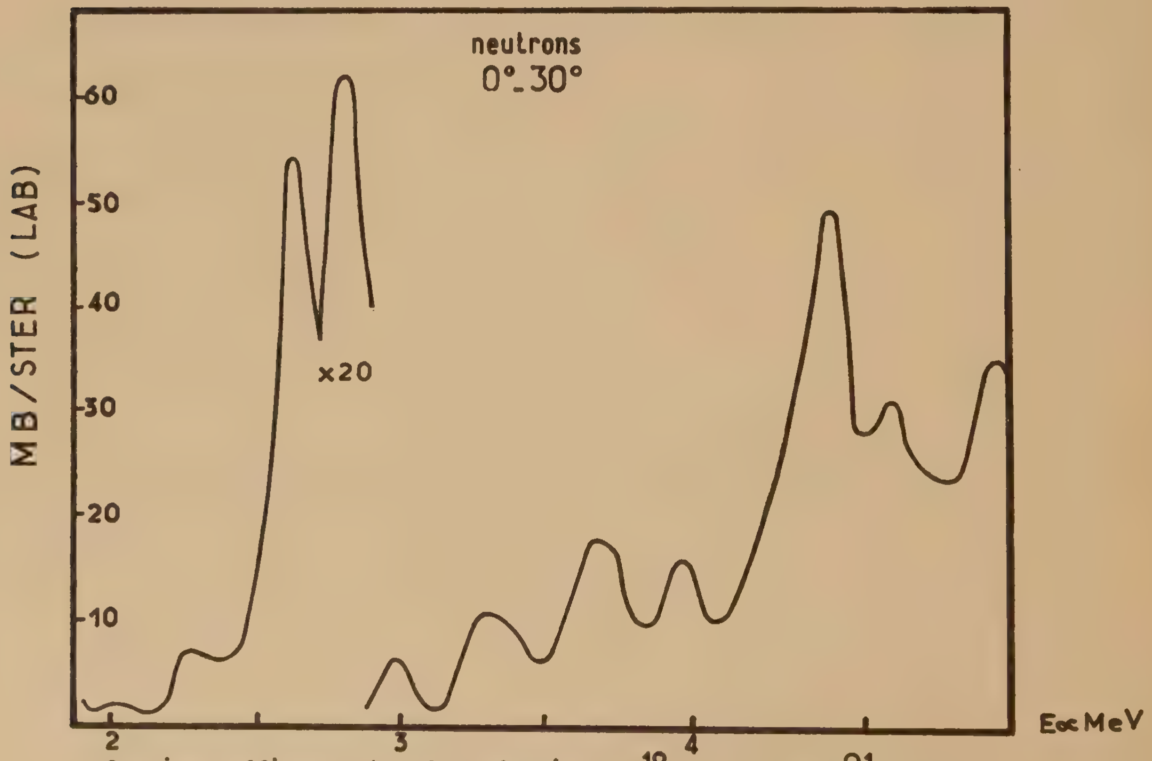
$P_{(4,9)} = 0,090$

$P_{(5,05)} = 0$

Annexe.3 Ref.5



Section efficace de la reaction C^{13} (∝ n) O^{16} suivant l'énergie des particules ∝



Section efficace de la réaction O^{18} (∝ n) Ne^{21} suivant l'énergie des particules ∝

ANNEXE IV

CALCUL DES RENDEMENTS DE REACTION (α , n) DANS DES MILIEUX COMPOSES.

Détermination de la loi de composition.

Nous savons que le rendement de réaction (α , n) en milieu composé est sensiblement proportionnel au produit du libre parcours de la particule par la densité des noyaux réactifs N :

$$\eta = P.R.N.$$

Nous allons rechercher la valeur de ce rendement en fonction du rendement pour l'élément réactif seul en opérant par superposition d'état.

Etat I -

Dans un volume V, soit M_1 gramme de l'élément a_1 et soit N_1 sa concentration volumique. Le rendement de réaction quand le corps est seul est η_{a_1}.

Pour l'élément a_1 seul, le libre parcours des particules α est R_1, d'où :

$$\eta_{a_1} = P.\ R_I\ .\ N_I$$

Etat II -

Dans ce même volume ajoutons M_2 gramme d'un élément a_2.

La concentration volumique de l'élément a_1 n'a pas varié, mais le libre parcours des particules α a changé. Dans ce cas, le rendement de réaction pour l'élément a_1 est η'_{a_1} :

$$\eta'_{a_1} = P\ .\ R_{II}\ .\ N_I$$

D'où le rendement de réaction partiel pour l'élément a_1 :

$$\eta'_{a_1} = \eta_{a_1} \quad \frac{R_{II}}{R_I}$$

La formule se généralise naturellement pour plusieurs éléments additionnels.

Pour déterminer $\frac{R_{II}}{R_I}$, nous ramenons chaque élément étranger à la réaction à une masse équivalente de l'élément considéré, et nous avons immédiatement :

$$\frac{R_{II}}{R_I} = \frac{M_1}{M_1 + M'_2 + \ldots\ldots + M'_n}$$

$M'_2 \ldots\ldots M'_n$ masses équivalentes des éléments étrangers à la réaction.

La régle de BRAGG [11] exprime que le libre parcours des particules α de même énergie, pour des éléments différents, est proportionnel à la racine carrée de la masse atomique de ces éléments :

$$M'_n = M_n \sqrt{\frac{A_1}{A_n}}$$

A_1 et A_n : masses atomiques des éléments a_1 et a_n.

D'où la formule qui donne le rendement de réaction relatif à un élément a_1 mé-mélangé à (n - 1) autres éléments :

$$\eta'_{a_1} = \eta_{a_1} \times \frac{1}{1 + \frac{M_2}{M_1}\sqrt{\frac{A_1}{A_2}} + \ldots\ldots + \frac{M_n}{M_1}\sqrt{\frac{A_1}{A_n}}}$$

La formule se généralise pour tous les éléments a_i :

$$\eta'_{a_i} = \eta_{a_i} \times \frac{1}{\frac{\sqrt{A_i}}{M_i} \quad \sum_1^n \frac{M_i}{\sqrt{A_i}}}$$

Le rendement de réaction total est égal à la somme des rendements partiels :

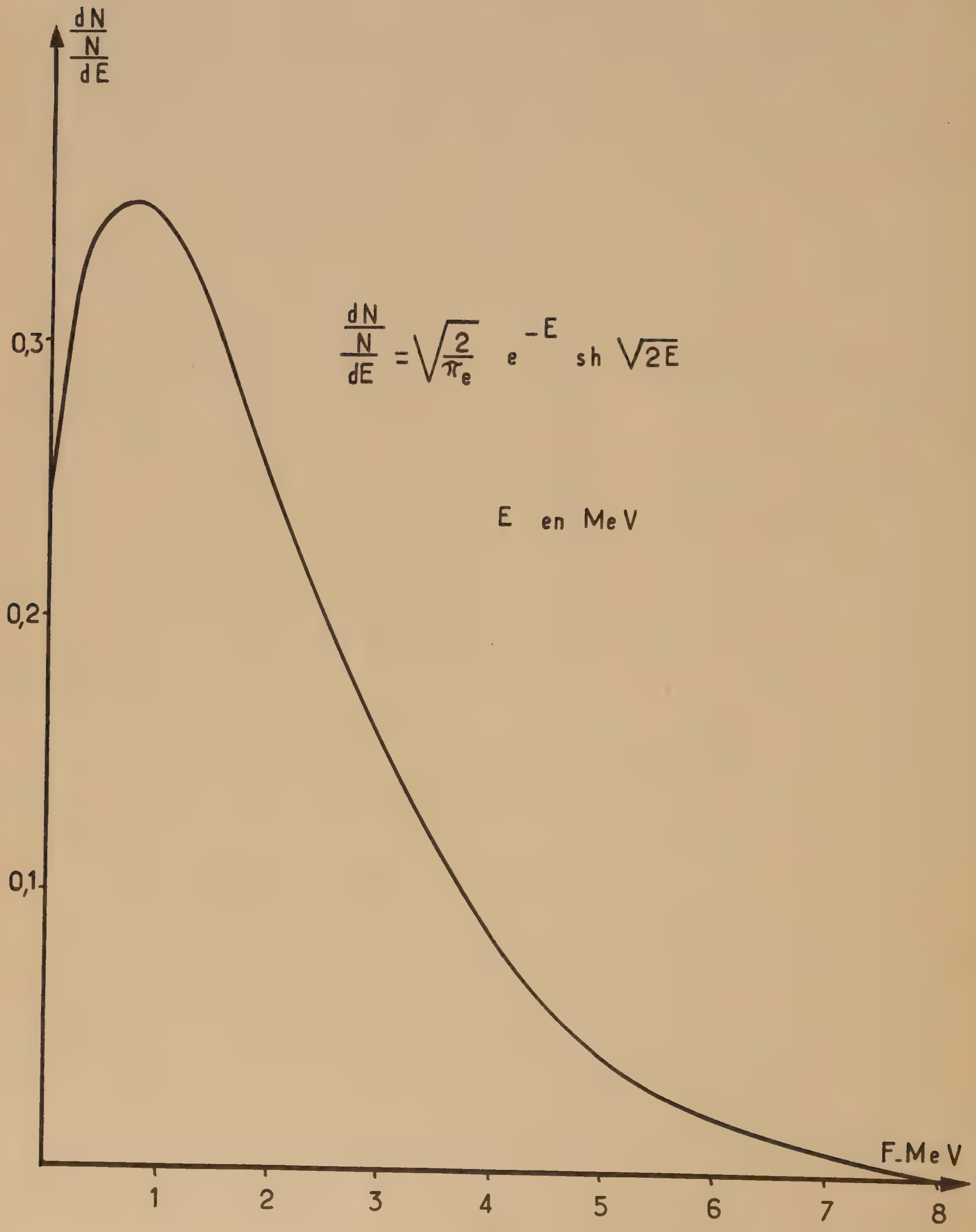
$$\eta'_T = \sum_1^n \eta'_{a_i}$$

ANNEXE IV - [6]

SECTIONS EFFICACES DE REACTIONS (α , n) Q DE REACTION ET ENERGIE MAXIMUM DES NEUTRONS, POUR LES α DE 5,3 MeV DU POLONIUM.

Isotope	Abondance isotopique %	Rendement/ 10^6 α état naturel	Rendement/ 10^6 α isotope seul	Q (α , n) MeV	E max. neutron MeV	Section efficace $cm^2 . 10^{-26}$/atome de l'isotope α de 5,3 MeV
^{6}Li	7,9	0	0	- 3,97		0
^{7}Li	92,1	2,6	2,6	- 2,78	1,33	0,8
^{9}Be	100	80	80	5,88	10,88	27
^{10}B	18,4		13	1,18	6,14	5,6
^{11}B	81,6	24	26	0,28	5,24	13
^{12}C	98,6	0,11	0	- 8,39		0
^{13}C	1,1		10	2,37	7,30	6,7
^{14}N	99,62		0	- 4,67		0
^{15}N	0,38		0	- 6,18		0
^{16}O	99,75		0	- 11,9		0
^{17}O	0,04	0,07	29	0,65	5,74	40
^{18}O	0,20			0,22	5,93	
^{19}F	100	12	12	- 0,4	4,56	22
^{20}Ne	90			- 7,09		0
^{21}Ne	0,27			- 2,05		
^{22}Ne	9,73			- 0,36		
^{23}Na	100	1,5	1,5	- 1,63	3,37	5,8
^{24}Mg	77,4		0			0
^{25}Mg	11,5	1,4		2,02	7,32	33
^{26}Mg	11,1		6,1	- 1,7	3,34	
^{27}Al	100	- 0,74	0,74	- 2,26	2,73	4,7
^{28}Si	89,6		0	- 7,75		0
^{29}Si	6,2	- 0,16	1,5	0,63	5,86	12
^{30}Si	4,2		1,5	- 1,68	3,42	
^{35}Cl	75,4	0,11	0	- 5,46		0
^{37}Cl	24,6		0,45	- 3,29	1,75	7
^{40}A	99,63	0,38	0,38	- 1,61	3,52	7

Annexe. 5 Réf. **13**.-Spectre d énergie des neutrons de fissions



REFERENCES

[1] Colloque sur l'instrumentation dans les usines de traitement chimique des combustibles irradiés
ENEA - Eurochemic
Paris, 22-23 Nov. 1963

[2] Dispositifs d'analyse en continu - Compteurs α, γ, neutrons - utilisation à l'usine d'extraction du plutonium.
par J. CHABERT, Communication privée

[3] Expérience de six années de fonctionnement de l'usine de retraitement de Marcoule par
C. JOUANNAUD, M. CHAMBON, R. RIOLFO, A. FONTAINE
3ème conférence internationale pour l'utilisation pacifique de l'énergie nucléaire, 1964, vol. 10

[4] Reactor Handbook - Stoller Richards
Editors - Interscience Publisher Inc., p. 157

[5] T.W. BONNER
Phys. Review 102-2 - 1348 (1956)

[6] J.H. ROBERTS
Neutron yields of several light elements bombarded with polonium alpha particles
MDDC 731 - 1964

[7] J.P. SCHIFFER
Phys. Review - 105-2 - 1811 (1957)

[8] SPENCER et FANO
Phys. Review - 93 - 1172 (1954)

[9] R.D. EVANS
Le noyau atomique, page 52, Dunod Editeur - Paris

[10] LIVINGSTONE, BETHE
Rev. Mod. Phys. 9-242 (1937)

[11] J. LABEYRIE
Détection des rayonnements nucléaires, page 50, CDU - Editeur
5 place de la Sorbonne, Paris.

[12] D.K. CARTWRIGHT
Nuclear Power, Octobre 1961

[13] B.E. WATT
Phys. Review - 87-1037 (1952)

[14] D. WURSTEN, F. BOURG, J. LE DEVEHAT
Communication privée

[15] F. BOURG
C.E.A. Communication privée.

[16] TAYLOR
Dynamics characteristics of a pulsed chemical extraction column
HW - 69-506, 1951

[17] WILDE
The operati ng behaviour of multistage system
I - The steady state - Chemical Engineering Science, Dec. 1961
II - The impulse reponse - Chemical Engineering Science, June 1962

[18] WILBURN
Mathematical determination of concentration profiles in two phase continuous counter current extractors
IEC - FUN D - 1964.

Manuscrit reçu le 22 Mars 1967

DEUXIEME THESE

Propositions données par la Faculté

"ETUDE DES ETATS D'EQUILIBRE ET DES REGIMES TRANSITOIRES
DES CONCENTRATIONS D'UNE BATTERIE D'EXTRACTION
LIQUIDE-LIQUIDE DE L'URANIUM."

Vu et approuvé :
PARIS le 12 Avril 1967
Le Doyen de la Faculté des Sciences

Marc. ZAMANSKY

Vu
et permis d'imprimer
Le Recteur de l'Académie de Paris

Jean ROCHE